PCT WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 5 :
C07D 239/52, 239/46, 239/34
C07D 239/30, 239/91, 239/94
C07D 495/04

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: **WO 92/05159**

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 2. April 1992 (02.04.92)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP91/01790

(22) Internationales Anmeldedatum: 19. September 1991 (19.09.91)

(30) Prioritätsdaten:
P 40 29 654.7 19. September 1990 (19.09.90) DE

(71) Anmelder *(für alle Bestimmungsstaaten ausser US)*: HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Postfach 80 03 20, D-6230 Frankfurt am Main 80 (DE).

(72) Erfinder; und
(75) Erfinder/Anmelder *(nur für US)* : MINN, Klemens [DE/DE]; Rossertstraße 61, D-6234 Hattersheim am Main (DE). BRAUN, Peter [DE/DE]; Pfarrer-Dorn-Straße 13, D-6500 Mainz (DE). SACHSE, Burkhard [DE/DE]; An der Ziegelei 30, D-6233 Kelkheim (DE). WICKE, Heinrich [DE/DE]; Schillerstraße 3, D-6239 Eppstein (DE).

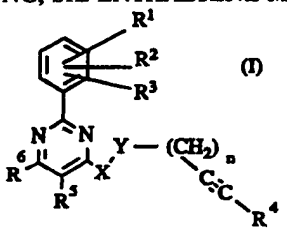
(74) Gemeinsamer Vertreter: HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT; Zentrale Patentabteilung, Postfach 80 03 20, D-6230 Frankfurt am Main 80 (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AT (europäisches Patent), BE (europäisches Patent), BR, CA, CH (europäisches Patent), CS, DE (europäisches Patent), DK (europäisches Patent), ES (europäisches Patent), FI, FR (europäisches Patent), GB (europäisches Patent), GR (europäisches Patent), IT (europäisches Patent), LU (europäisches Patent), NL (europäisches Patent), NO, SE (europäisches Patent), US.

Veröffentlicht
Mit internationalem Recherchenbericht.

(54) Title: 2-PHENYL-PYRIMIDINES, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AGENTS CONTAINING THE SAME AND THEIR USE AS FUNGICIDES

(54) Bezeichnung: 2-PHENYL-PYRIMIDINE, VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG, SIE ENTHALTENE MITTEL UND IHRE VERWENDUNG ALS FUNGIZIDE



(I)

(57) Abstract

Compounds have formula (I), in which R^1, R^2, R^3 represent independently from each other hydrogen, chlorine, bromine, nitro or (C_1-C_4)alkoxy; R^4 represents hydrogen, iodine, bromine, (C_1-C_4)alkyl, dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, phenyl-(C_1-C_4)alkyl(C_1-C_4)alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, phenyl or pyridinyl eventually substituted in the phenyl (heteroaromatic) moiety by halogen, (C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)alkoxy or perhalo-(C_1-C_4)alkyl; R^5 represents halogen, (C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)alkoxy, phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, (C_1-C_4)alkinyloxy, (C_1-C_4)alkylmercapto or (C_1-C_4)alkylsulfonyl; R^6 represents hydrogen, (C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl or (C_1-C_4)alkoxy-carbonyl; R^5 and R^6 if necessary form together a saturated or insaturated ring moiety with 5 or 6 members, in which a carbon can be substituted by an S; X represents C=O or NH; Y represents O or NH when X represents C=O; Y is absent when X represents O or NH; and n is a number from 0 to 2. These compounds have advantageous pesticide properties, in particular against fungus pests. A process for producing compounds having formula (I) is also disclosed.

(57) Zusammenfassung

Verbindungen der Formel (I), worin R^1, R^2, R^3 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Chlor, Brom, Nitro oder (C_1-C_4)Alkoxy, R^4 = Wasserstoff, Jod, Brom, (C_1-C_4)Alkyl, Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, Phenyl-(C_1-C_4)alkyl-(C_1-C_4)alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, im Phenylteil (Heteroaromat) durch Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy oder Perhalo-(C_1-C_4)alkyl gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Pyridinyl, R^5 = Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, Phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, (C_1-C_4)Alkinyloxy, (C_1-C_4)Alkylmercapto oder (C_1-C_4)Alkylsulfonyl, R^6 = Wasserstoff, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, R^5 und R^6 gegebenenfalls zusammen einen Teil eines gesättigten oder ungesättigten Cyclus mit 5 oder 6 Ringgliedern, bei dem ein Kohlenstoff durch ein S substituiert sein kann, X = C = O, O oder NH, Y = O oder NH, wenn X=C=O ist, Y = entfällt, wenn X=O oder NH ist und n = eine Zahl von 0 bis 2 bedeuten, besitzen vorteilhafte Eigenschaften bei der Bekämpfung von Schädlingen, insbesondere von Schadpilzen. Ferner werden Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) beschrieben.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Code, die zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	ES	Spanien	ML	Mali
AU	Australien	FI	Finnland	MN	Mongolei
BB	Barbados	FR	Frankreich	MR	Mauritanien
BE	Belgien	GA	Gabon	MW	Malawi
BF	Burkina Faso	GB	Vereinigtes Königreich	NL	Niederlande
BG	Bulgarien	GN	Guinea	NO	Norwegen
BJ	Benin	GR	Griechenland	PL	Polen
BR	Brasilien	HU	Ungarn	RO	Rumänien
CA	Kanada	IT	Italien	SD	Sudan
CF	Zentrale Afrikanische Republik	JP	Japan	SE	Schweden
CG	Kongo	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SN	Senegal
CH	Schweiz	KR	Republik Korea	SU+	Soviet Union
CI	Côte d'Ivoire	LI	Liechtenstein	TD	Tschad
CM	Kamerun	LK	Sri Lanka	TG	Togo
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	US	Vereinigte Staaten von Amerika
DE	Deutschland	MC	Monaco		
DK	Dänemark	MG	Madagaskar		

+ Die Bestimmung der "SU" hat Wirkung in der Russischen Föderation. Es ist noch nicht bekannt, ob solche Bestimmungen in anderen Staaten der ehemaligen Sowjetunion Wirkung haben.

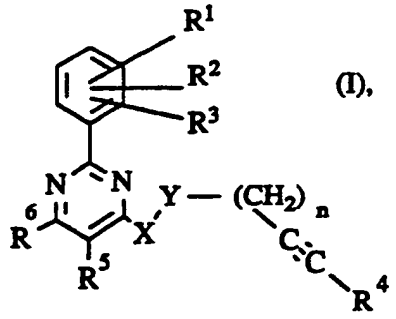
Beschreibung

2-Phenyl-pyrimidine, Verfahren zu ihrer Herstellung, sie enthaltene Mittel und ihre Verwendung als Fungizide.

Anwendungen von 2-Phenyl-pyrimidinen im Agrarsektor sind beschrieben (z.B. EP 136 976, DE 27 34 827, EP 323 757, EP 112 280, JP 61/012206). Man findet aber nur wenige Hinweise auf fungizide Wirkung bei dieser Substanzklasse (Yakugaku Zasshi, 109(7) (1989), 464-473; EP 323 757, DD 246 295, DD 238 791, DE 18 00 709).

Es wurden 2-Phenylpyrimidin-Derivate gefunden, die vorteilhafte Wirkungen bei der Bekämpfung eines breiten Spektrums phytopatogener Pilze, insbesondere bei niedrigen Dosierungen, aufweisen und keine Schädigung der Nutzpflanzen verursachen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind daher Verbindungen der Formel


(I),

worin

R^1, R^2, R^3 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Thiocyano, (C_1-C_4)Alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_1-C_4)Alkylcarbonylamino, Halo-(C_1-C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl,

(C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^1,R^2 und/oder R^3 gegebenenfalls zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N, S, Si oder P mit 4 bis 10 Ringgliedern,

R^4 = Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl,

(C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituierter 5- oder 6-gliedriger Heteroaromat, gegebenenfalls substituiertes Phenylcarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil (Heteroaromat) bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^5 = Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_9)Alkoxy, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes

Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl , (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^6 = Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkyloxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkyloxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl,

(C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^5 und R^6 gegebenenfalls zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N, S, Si oder P mit 4 bis 10 Ringgliedern,

X = O, S, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl, C=O, C=S oder CR^7R^8

R^7, R^8 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Hydroxy, (C_1-C_4)Alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxy.

Y = O, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl oder CR^9R^{10}, wenn X = C = O, C = S oder CR^7R^8 bedeutet, oder CR^9R^{10} oder entfällt, wenn X = O, S, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl bedeutet,

R^9, R^{10} = unabhängig voneinander Wasserstoff, (C_1-C_9)Alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^9 und R^{10} gegebenenfalls zusammen einen gesättigten oder teilweise ungesättigten Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N, S, Si oder P mit 4 bis 10 Ringgliedern und

n = eine Zahl von 0 bis 8 bedeuten, sowie deren Säureadditionssalze.

In Formel I bedeutet

R^1, R^2, R^3 bevorzugt unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Thiocyano, (C_1-C_4)Alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, Halo-(C_1-C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann.

R^1,R^2 und/oder R^3 können zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N oder S mit 4 bis 10 Ringgliedern bilden.

R^1, R^2, R^3 sind insbesondere unabhängig voneinander Wasserstoff, Chlor, Brom, Nitro oder (C_1-C_4)Alkoxy, besonders bevorzugt Wasserstoff, Chlor, Brom oder OCH_3.

R^4 bedeutet bevorzugt Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl,

Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Perhalo-(C_1-C_4)alkylthio, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituierter 5- oder 6-gliedriger Heteroaromat, beispielsweise Pyrimidin, Pyridin oder Thiophen, gegebenenfalls substituiertes Phenylcarbonyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylring (Heteroaromat) bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann.

R^4 ist insbesondere Wasserstoff, Jod, Brom, Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, Phenyl-(C_1-C_4)alkyl-(C_1-C_4)alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, im Phenylteil (Heteroaromat) durch Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy oder Perhalo-(C_1-C_4)alkyl gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Pyridinyl, besonders bevorzugt Wasserstoff.

R^5 bedeutet bevorzugt Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_9)Alkoxy, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann und

R^5 ist insbesondere Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, Phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, (C_1-C_4)Alkinyloxy, (C_1-C_4)Alkylmercapto oder (C_1-C_4)Alkylsulfonyl, besonders bevorzugt Cl, Br, OCH_3 oder OC_2H_5.

R^6 bedeutet bevorzugt Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Perhalo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebnenfalls substituiertes Phenoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituert sein kann.

R^6 ist insbesondere Wasserstoff, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, besonders bevorzugt Wasserstoff oder -O-CH_2-CH_2-.

R^5 und R^6 können zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N oder S, insbesondere mit 4 bis 10, insbesondere 5 oder 6 Ringgliedern bilden.

Bevorzugt stehen X für O, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl, S, C=O, C=S oder CR^7R^8, insbesondere für C=O, O oder NH und

R^7, R^8 sind bevorzugt unabhängig voneinander für Wasserstoff, Hydroxy, (C_1-C_4)Alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxy,

Y ist vorzugsweise O, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl oder CR^9R^{10}, insbesondere O oder NH, wenn X = C=O, C=S oder CR^7R^8, oder Y = CR^9R^{10} oder entfällt, insbesondere entfällt Y, wenn X = O, S, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl ist,

R^9, R^{10} sind unabhängig voneinander Wasserstoff, (C_1-C_9)Alkyl oder durch Halogen, (C_1-C_4)Alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxy gegebenenfalls substituiertes Phenyl,

R^9 und R^{10} können zusammen einen gesättigten oder teilweise ungesättigten Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N oder S mit 4 bis 10, insbesondere 5 oder 6 Ringgliedern bilden,

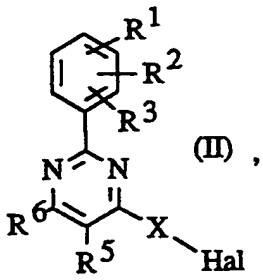
n ist vorzugsweise eine Zahl von 0 bis 4, insbesondere eine Zahl von 0 bis 2

Halo bedeutet in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert.

Zur Herstellung der Säureadditionssalze der Verbindungen der Formel I kommen folgende Säuren in Frage: Halogenwasserstoffsäuren wie Chlorwasserstoffsäure oder Bromwasserstoffsäure, Phosphorsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, mono- oder bifunktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonsäuren wie Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Citronensäure, Salicylsäure, Sorbinsäure oder Milchsäure, sowie Sulfonsäuren wie p-Toluolsulfonsäure oder 1,5-Naphthalindisulfonsäure. Die Säureadditionsverbindungen der Formel I können in einfacher Weise nach den üblichen Salzbildungsmethoden, z.B. durch Lösen einer Verbindung der Formel I in einem geeigneten organischen Lösungsmittel und Hinzufügen der Säure erhalten werden und in bekannter Weise, z.B. durch Abfiltrieren, isoliert und gegebenenfalls durch Waschen mit einem inerten organischen Lösungsmittel gereinigt werden.

Die Pyrimidine der Formel I können nach verschiedenen mehrstufigen Verfahren hergestellt werden.

Man erhält die Verbindungen der Formel I, worin Y = O, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl und X = C=O, C=S oder CR^7R^8 bedeuten, indem man Verbindungen der Formel II



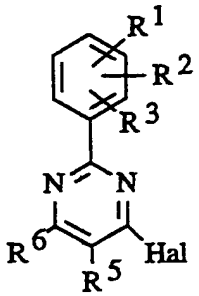
(II),

worin
Hal = Chlor oder Brom bedeutet,
mit Verbindungen der Formel III



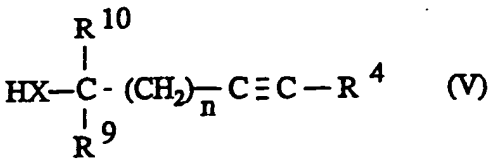
(III)

oder, falls in der Formel I Y = CR^9R^{10} oder entfällt und X = O, S, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl bedeutet, indem man Verbindungen der Formel IV



(IV),

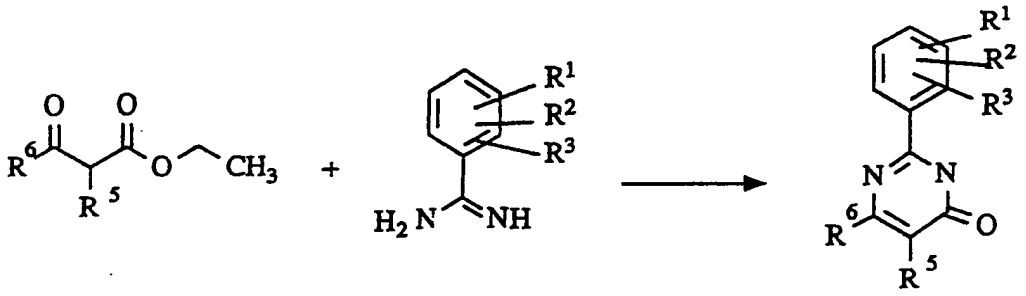
worin
Hal = Chlor oder Brom bedeutet,
mit Verbindungen der Formel V



(V)

umsetzt, sowie gegebenenfalls, wenn R^4 = H bedeutet, den Wasserstoff gegen Halogen austauscht.

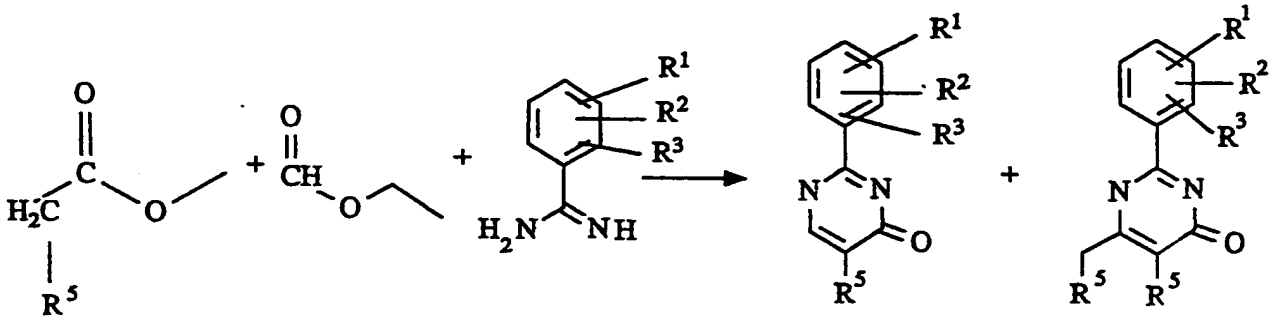
Durch Kondensation geeigneter 3-Ketocarbonsäureester mit Benzamidinen, wobei sie in reiner Form oder in situ, aus ihren Salzen freigesetzt, eingesetzt werden können, ohne Lösungsmittel oder in einem geeigneten aprotischen oder protischen Lösungsmittel z.B. Wasser oder niedere Alkohole, bei Temperaturen von 0°C bis 160 °C, bevorzugt bei Temperaturen zwischen Raumtemperatur und der Siedetemperatur des Lösungsmittel, in Gegenwart einer geeigneten Base, wie Alkalicarbonate, Na_2CO_3 oder K_2CO_3, oder Alkalialkoholate, z.B. NaOMe oder NaOEt, zu entsprechenden 4-Pyrimidinonen.



Die Verfahren sind aus der Literatur (vergl. Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3, S.113) bekannt, die Edukte sind käuflich oder können nach literaturbekannten Verfahren hergestellt werden.

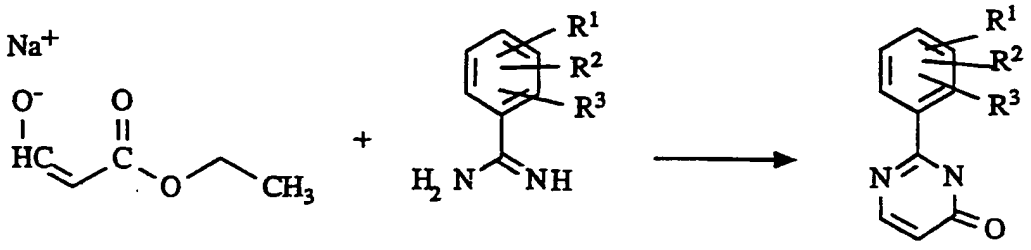
4-Pyrimidinone mit R^6 = Wasserstoff können in Anlehnung an entsprechende Literaturvorschriften (Beilstein, 3./4. Ergänzungswerk, Band 25, S. 279) 2-stufig in einem Eintopfverfahren hergestellt werden. Zunächst werden in einem inerten Lösungsmittel, wie Toluol, THF, Dioxan oder Diethylether, entsprechende Carbonsäurederivate mit einer geeigneten Base, im allgemeinen mit einem Alkalihydrid, vorzugsweise NaH, oder Alkalialkoholat, vorzugsweise NaOMe, anionisiert, dann mit einem Ameisenester formyliert.

Die anschließende Kondensation kann mit Benzamidinen erfolgen, wobei diese in reiner Form oder in situ, mittels Basen, z.B. mit Alkoholaten wie NaOMe, aus Ihren Salzen freigesetzt, eingesetzt werden. Als besonders geeignet für die Kondensation haben sich protische Lösungsmittel, insbesondere niedere Alkohole, erwiesen.



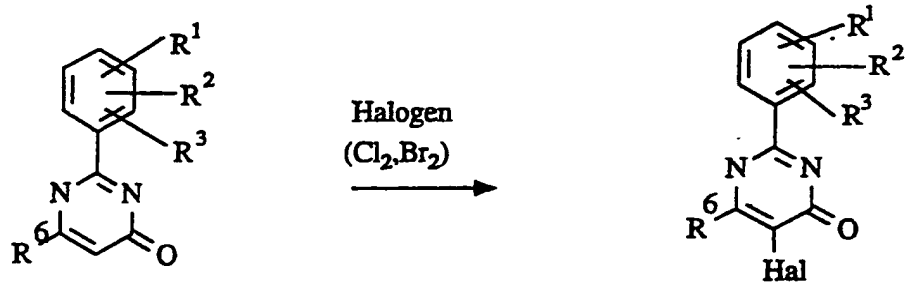
Bei genügendem Überschuß an Ameisenester erhält man das 6-H-Derivat bei guter Selektivität.

Die Edukte, bei denen R^5 und R^6 = Wasserstoff bedeuten, können in Anlehnung an die oben genannten Methoden durch Umsetzung von Natriumformylessigsäureestern (Beilstein, Hauptwerk, Band 3, S. 627) mit Benzamidinen hergestellt werden, wobei diese in reiner Form oder in situ, mittels Basen, z.B. mit Alkoholaten wie NaOMe, aus ihren Salzen freigesetzt, eingesetzt werden. Die Reaktion kann in protischen Lösungsmittel, wie Wasser oder Alkoholen, bei Raumtemperatur, erhöhten Temperaturen oder auch bei der Siedetemperatur des Lösungsmittels erfolgen, wobei gegebenenfalls eine Hilfsbase wie Alkalicarbonate oder Alkalialkoholate eingesetzt werden können.

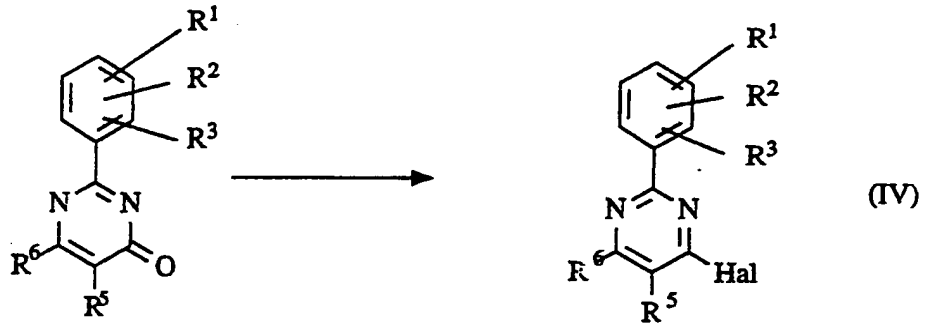


Die Modifizierung bekannter Pyrimidinone, insbesondere zur Herstellung von Verbindungen der Formel I mit R^5 = Halogen, erfolgt durch Umsetzung der entsprechenden 4-Pyrimidinone

mit elementaren Halogenen, beispielsweise Chlor oder Brom, in einem aprotischen oder protischen Lösungsmittel wie Essigsäure (vergl. Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3, S.70).



Die so erhaltenen 4-Pyrimidinone können mit überschüssigem $POCl_3$ ($POBr_3$) ohne Lösungsmittel, in einem gegen $POCl_3$ ($POBr_3$) inertem Lösungsmittel oder in einem basischen Lösungsmittel wie DMF ohne oder mit einem Säurefänger wie N,N-Dimethylanilin in 0,001 bis 2 Moläquivalenten, im allgemeinen 0,02 Äquivalenten, bei Temperaturen von 50°C bis 110°C, bevorzugt bei der Siedetemperatur des $POCl_3$ ($POBr_3$), in die entsprechenden 4-Halogenpyrimidine der Formel (IV) überführt werden (vergl. Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3, S.89).

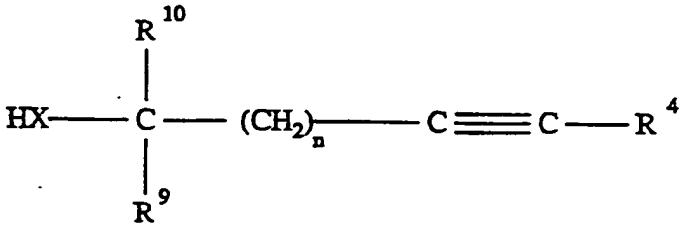


(IV)

In Abhängigkeit von der Reaktivität der Derivate kann man bei den 4-Halogenpyrimidinen in einem inerten Lösungsmittel beispielsweise Toluol oder THF bei einer Temperatur von 0°C bis 150°C, vorzugsweise von 25°C bis 50°C, das Halogenatom gegen Alkoholate der entsprechenden Alkinole (Formel V), hergestellt aus dem entsprechenden Alkinol und einer Base, vorzugsweise NaH, austauschen (vergl. Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R.

Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3, S. 100).

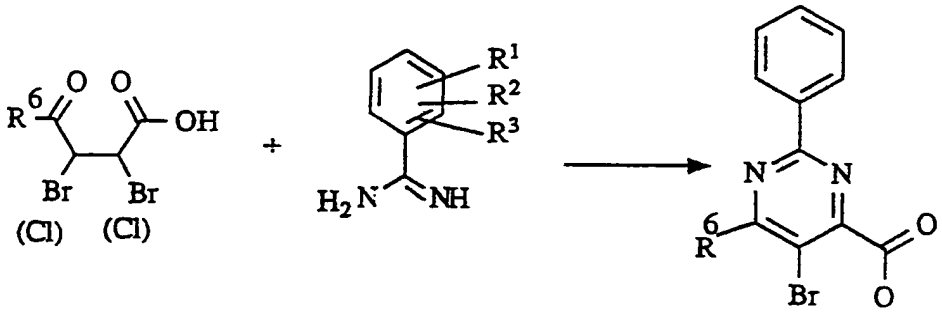
In analoger Weise kann man auch entsprechende Amine (Formel V)



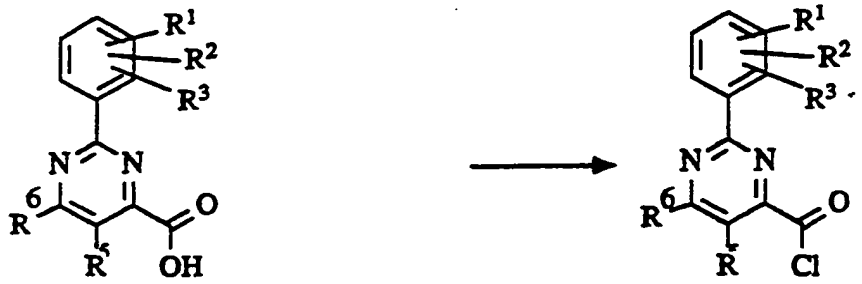
(V)

in geeigneten Lösungsmitteln, wie DMF, Acetonitril oder DMSO, mit 4-Halogenpyrimidinen umsetzen, wobei hier die entstehende HCl (HBr) mit einer Base, z.B. Triethylamin, abgefangen werden sollte.

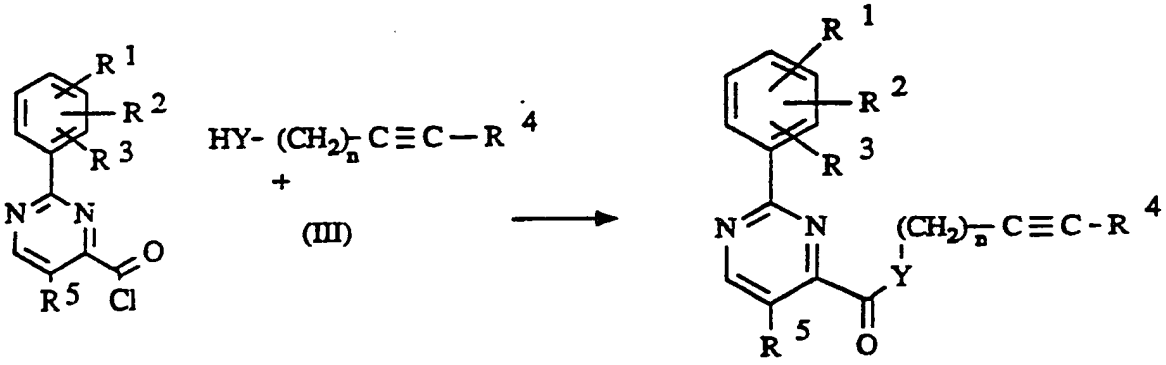
Pyrimidine der Formel I, worin Y = O, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl bedeutet, können durch Reaktion von Mucobrom(chlor)säure erhalten werden (vergl. Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3, S. 127). Überträgt man diese Reaktionsfolge auf Benzamidine oder deren Salze, so erhält man Pyrimidinium-Salze (vergl. Beilstein, Hauptwerk, Band 25, S. 141). In protischen Lösungsmitteln kann man bei Temperaturen von 25°C bis zur Siedetemperatur des Lösungsmittels, vorzugsweise von 40°C bis 60°C, unter Basenzusatz, vorzugsweise Alkalialkoholate, Pyrimidincarbonsäure-Salze als Kondensationsprodukte erhalten.



Die nachfolgende Chlorierung der Carbonsäure mit Chlorierungsreagenzien, z.B. Thionylchlorid, ergibt die enstprechenden aktivierten Säure-Derivate.

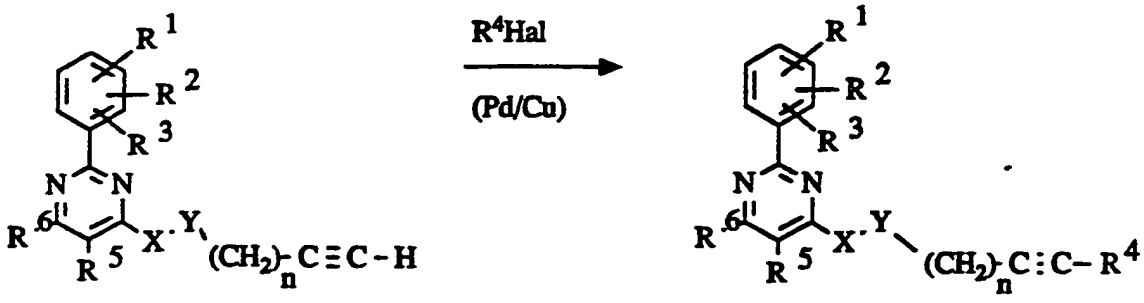


Die Umsetzung der 4-Pyrimidincarbonsäurechloride mit entsprechenden Alkoholen, Alkoholaten oder Aminen, die jeweils bereits eine Dreifachbindung tragen, in protischen oder aprotischen Lösungsmitteln, führt unter Standardbedingungen zu entsprechenden Estern oder Amiden.

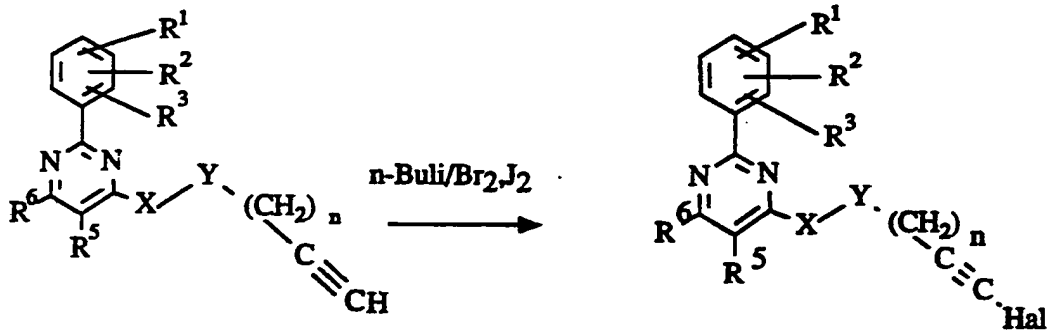


Entsprechend können Verbindungen der Formel II, in denen X eine andere Bedeutung als C=O hat, hergestellt werden.

Als Beispiel für eine nachträgliche Modifizierung sei eine Übergangsmetall-katalysierte Arylierung der Alkinylfunktion (vergl. M. Fieser, L.F. Fieser, Reagents for Organic Synthesis, John Wiley and Sons, New York, Chichester 1977, Vol. 6, Seite 59 ff.) genannt. So kann man beispielsweise in Mischungen aus inerten und basischen Lösungsmitteln oder in basischen Lösungsmitteln beispielsweise Triethylamin, Alkine mit halogenierten, z.B. jodierten) Aromaten oder Heteroaromaten zur Reaktion bringen, wobei bevorzugt modifizierte Pd-Katalysatoren verwendet werden.



Als weiteres Beispiel für eine nachträgliche Modifizierung sei die Halogenierung der Alkinyl-Funktion genannt. In Abwandlung literaturbekannter Methoden ("Alkine, Di- und Polyine, Allene, Kumulene" / Methoden der organischen Chemie/(Houben/Weyl), Thieme-Verlag, Stuttgart, 1977, Band 5,2a: S. 600 ff.) kann in einem geeigneten aprotischen Lösungsmittel, wie THF oder Dioxan, mit Basen, z.B. n-Butyllithium, das terminale Proton des Ethinyl-Derivates abstrahiert und anschließend ein Halogen, beispielsweise Jod oder Brom, eingeführt werden.



Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel I können zum Schutz verschiedener Kulturpflanzen gegen pathogene Mikroorganismen, insbesondere Fungi, eingesetzt werden, wobei sie sich durch eine besonders hohe Kulturpflanzenverträglichkeit auszeichnen. Sie besitzen vorteilhafte präventive und systemische Eigenschaften, bereits in das pflanzliche Gewebe eingedrungene pilzliche Krankheitserreger lassen sich auch erfolgreich kurativ bekämpfen. Durch Besprühen, Bestäuben oder andere Applikationen mit Wirkstoffen der Formel I können Pflanzen und bestehende oder zuwachsende Pflanzenteile vor auftretenden Schädlingen geschützt werden. Sie eignen sich auch als Beizmittel zur Behandlung von

Saatgut und Stecklingen zum Schutz vor Pilzinfektionen sowie im Erdboden auftretende pathogene Pilze. Das Wirkungsspektrum der beanspruchten Verbindungen erfaßt eine Vielzahl verschiedener wirtschaftlich bedeutender, phytopathogener Pilze, wie Alternaria mali, Botrytis cinerea, Benzimidazol- und Dicarboximid- sensible und resistente Stämme, Sclerotinia sclerotiorum sowie weitere Grauschimmelarten,Cercospora beticola,Ceratobasidium cerealis,Erysiphe graminis, Erysiphe graminis hordei, Erysiphe chichoracearum sowie andere Echte Mehltauarten, Fusarium culmorum und andere Fusariumarten, Moniliniaarten, Leptosphaeria nodorum sowie andere Septoriaarten und Blattfleckenverursachende Arten, Pellicularia sasakii, Pyricularia oryzae und andere Reispilzsarten, Phytophthora infestans, Phytophtora capsici und verschiedene andere Kraut- und Knollenfäulepilze, Plasmopara viticola, Pseudoperonospora cubensis und weitere Pernospora oder Falsche Mehltauarten, Pseudocercosporella herpotrichoides und verschiedene andere Augenflecken bzw. Halmbruch verursachende Pilzarten, Puccinia recondita und verschiedene andere Rostpilze, Pyrenophora teres und andere Drechsleraarten, Ustilagoarten, Venturia inaequalis und Schorfarten, wobei jedoch die Wirkung gegen Ascomyceten und Deuteromyceten und insbesonders gegen BCM-resistente Pseudocercosporella herpotrichoides-Stämme hervorzuheben ist.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen eignen sich daneben auch für den Einsatz in technischen Bereichen, beispielsweise als Holzschutzmittel, als Konservierungsmittel in Anstrichfarben, in Kühlschmiermittel für die Metallbearbeitung oder als Konservierungsmittel in Bohr- und Schneidölen.

Gegenstand der Erfindung sind auch Mittel, die die Verbindungen der Formel I neben geeigneten Formulierungshilfsmitteln enthalten. Die erfindungsgemäßen Mittel enthalten die Wirkstoffe der Formel I im allgemeinen zu 1 bis 95 Gew.-%.

Sie können auf verschiedene Art formuliert werden, je nachdem wie es durch die biologischen und chemisch-physikalischen Parameter vorgegeben ist. Als Formulierungsmöglichkeiten kommen daher in Frage: Spritzpulver (WP), emulgierbare Konzentrate (EC), wäßrige Dispersionen auf Öl- oder Wasserbasis (SC), Suspoemulsionen (SC), Stäubemittel (DP), Beizmittel, Granulate in Form von wasserdispergierbaren Granulaten (WG), ULV-Formulierungen, Mikrokapseln, Wachse oder Köder.

Diese einzelnen Formulierungstypen sind im Prinzip bekannt und werden beispielsweise beschrieben in:
Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie", Band 7, C.Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986; van Falkenberg, "Pesticides Formulations", Marcel Dekker N.Y., 2nd Ed. 1972-73; K. Martens, "Spray Drying Handbook", 3rd Ed. 1979, G. Goodwin Ltd. London.

Die notwendigen Formulierungshilfsmittel wie Inertmaterialien, Tenside, Lösungsmittel und weitere Zusatzstoffe sind ebenfalls bekannt und werden beispielsweise beschrieben in: Watkins, "Handbook of Insecticide Dust Diluents and Carriers", 2nd Ed., Darland Books, Caldwell N.J.; H.v.Olphen, "Introduction to Clay Colloid Chemistry, 2nd Ed., J. Wiley & Sons, N.Y.; Marsden, "Solvents Guide", 2nd Ed., Interscience, N.Y. 1950; Mc Cutcheon's, "Detergents and Emulsifiers Annual", MC Publ. Corp., Ridgewood, N.J.; Sisley and Wood. "Encyclopedia of Surface Active Agents", Chem. Publ. Co. Inc., N.Y. 1964; Schönfeldt, "Grenzflächenaktive Äthylenoxidaddukte", Wiss. Verlagsgesell., Stuttgart 1976; Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie", Band 7, C. Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986.

Auf der Basis dieser Formulierungen lassen sich auch Kombinationen mit anderen pestizid wirksamen Stoffen, Düngemitteln und/oder Wachstumsregulatoren herstellen, z. B. in Form einer Fertigformulierung oder als Tankmix.

Spritzpulver sind in Wasser gleichmäßig dispergierbare Präparate, die neben dem Wirkstoff außer einem Verdünnungs- oder Inertstoff noch Netzmittel, z. B. polyoxethylierte Alkylphenole, polyoxethylierte Fettalkohole, Alkyl- oder Alkylphenol-sulfonate und Dispergiermittel, z. B. ligninsulfonsaures Natrium, 2,2'-dinaphthyl-methan-6,6'-disulfonsaures Natrium, dibutylnaphthalin-sulfonsaures Natrium oder auch oleoylmethyltaurinsaures Natrium enthalten. Emulgierbare Konzentrate werden durch Auflösen des Wirkstoffes in einem organischen Lösungsmittel, z. B. Butanol, Cyclohexanon, Dimethylformamid, Xylol oder auch höhersiedenden Aromaten oder Kohlenwasserstoffen unter Zusatz von einem oder mehreren Emulgatoren hergestellt.

Als Emulgatoren können beispielsweise verwendet werden: Alkylarylsulfonsaure Calcium-Salze wie Ca-dodecylbenzolsulfonat oder nichtionogene Emulgatoren wie Fettsäurepolyglykolester, Alkylarylpolyglykolether, Fettalkoholpolyglykolether,

Propylenoxid-Ethylenoxid-Sorbitanfettsäureester, Polyoxethylensorbitan-Fettsäureester oder Polyoxethylensorbitester.

Stäubemittel erhält man durch Vermahlen des Wirkstoffes mit fein verteilten festen Stoffen, z. B. Talkum, natürlichen Tonen wie Kaolin, Bentonit, Poryphillit oder Diatomeenerde. Granulate können entweder durch Verdüsen des Wirkstoffes auf adsorptionsfähiges, granuliertes Inertmaterial hergestellt werden oder durch Aufbringen von Wirkstoffkonzentraten mittels Klebemitteln, z. B. Polyvinylalkohol, polyacrylsaurem Natrium oder auch Mineralölen, auf die Oberfläche von Trägerstoffen wie Sand, Kaolinite oder von granuliertem Inertmaterial. Auch können geeignete Wirkstoffe in der für die Herstellung von Düngemittelgranulaten üblichen Weise - gegebenenfalls in Mischung mit Düngemitteln - granuliert werden.

In Spritzpulvern beträgt die Wirkstoffkonzentration 10 bis 90 Gew.-%, der Rest zu 100 Gew.-% besteht aus üblichen Formulierungsbestandteilen. Bei emulgierbaren Konzentraten kann die Wirkstoffkonzentration 5 bis 80 Gew.-% betragen. Staubförmige Formulierungen enthalten meistens 5 bis 20 Gew.-%. Bei Granulaten hängt der Wirkstoffgehalt zum Teil davon ab, ob die wirksame Verbindung flüssig oder fest vorliegt und welche Verbindung flüssig oder fest vorliegt und welche Granulierhilfsmittel, Füllstoffe usw. verwendet werden.

Daneben enthalten die genannten Wirkstofformulierungen gegebenenfalls die jeweils üblichen Haft-, Netz-, Dispergier-, Emulgier-, Penetrations-, Lösungsmittel, Füll- oder Trägerstoffe.

Zur Anwendung werden die in handelsüblicher Form vorliegenden Konzentrate gegebenenfalls in üblicher Weise verdünnt, z. B. bei Spritzpulvern, emulgierbaren Konzentraten, Dispersionen und teilweise auch bei Mikrogranulaten mittels Wasser.

Staubförmige und granulierte Zubereitungen sowie versprühbare Lösungen werden vor der Anwendung üblicherweise nicht mehr mit weiteren inerten Stoffen verdünnt.

Mit den äußeren Bedingungen wie Temperatur, Feuchtigkeit u. a. variiert die erforderliche Aufwandmenge. Sie kann innerhalb weiter Grenzen schwanken, z. B. von 0,005 bis 10,0 kg/ha, vorzugsweise liegt sie im Bereich von 0,01 bis 5 kg/ha.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in ihren handelsüblichen Formulierungen entweder allein oder in Kombination mit weiteren, literaturbekannten Fungiziden angewendet werden.

Als literaturbekannte Fungizide, die erfindungsgemäß mit den Verbindungen der Formel I kombiniert werden können, sind beispielsweise folgende Produkte zu nennen:
Imazalil, Prochloraz, Fenapanil, SSF 105, Triflumizol, PP 969, Flutriafol, BAY-MEB 6401. Propiconazol, Etaconazol, Diclobutrazol, Tebuconazole, Bitertanol, Triadimefon, Triadimenol, Fluotrimazol, Tridemorph, Dodemorph, Fenpropimorph, Falimorph, Dimethomorph, S-32165, Chlobenzthiazone, Parinol, Buthiobat, Fenpropidin, Triforine, Fenarimol, Nuarimol, Triarimol, Ethirimol, Dimethirimol, Bupirimate, Rabenzazole, Tricyclazole, Fluobenzimine, Pyroxyfur, NK-483, PP-389, Pyroquilon, Hymexazole, Fenitropan, UHF-8227, Cymoxanil, Dichloflunanid, Captafol, Captan, Folpet, Tolylfluanid, Chlorothalonil, Etridiazol, Iprodione, Procymidon, Vinclozolin, Metomeclan, Myclozolin, Dichlozolinate, Fluorimide, Drazoxolan, Chinomethionate, Nitrothalisopropyl, Dithianon, Dinocap, Binapacrvl, Fentinacetate, Fentinhydroxide, Carboxin, Oxycarboxin, Pyracarbolid, Methfuroxam, Fenfuram, Furmecyclox, Benodanil, Mebenil, Mepronil, Flutolanil, Fuberidazole, Thiabendazole, Carbendazim, Benomyl, Thiophanate, Thiophanatemethyvl, CGD-95340 F, IKF-1216, Mancozeb, Zineb, Nabam, Thiram, Propineb, Prothiocarb, Propamocarb, Dodine, Guazatine, Dicloran, Quintozene, Chloroneb, Tecnazene, Biphenyl, Anilazine, 2-Phenylphenol, Kupferverbindungen wie Cu-oxychlorid, Oxine-Cu, Cu-oxide, Schwefel, Fosethylaluminium, Natrium-dodecylbenzolsulfonat, Natrium-dodecylsulfat, Natrium-C13/C15-alkoholethersulfonat, Natriumcetostearylphosphatester, Dioctyl-natriumsulfosuccinat, Natrium-isopropylnaphthalinsulfonat, Natrium-methylenbisnaphthalinsulfonat, Cetyl-trimethyl-ammoniumchlorid,

Salze von langkettigen primären, sekundären oder tertiären Aminen, Alkyl-propylenamine, Lauryl-pyridinium-bromid, ethoxilierte quaternierte Fettamine, Alkyl-dimethyl-benzylammoniumchlorid und 1-Hydroxyethyl-2-alkyl-imidazolin.

Die oben genannten Kombinationspartner stellen bekannte Wirkstoffe dar, die zum großen Teil in CH. R. Worthing, U.S.B. Walker, The Pesticide Manual, 7. Auflage (1983), British Crop Protection Council, beschrieben sind.

Darüber hinaus können die erfindungsgemäßen Wirkstoffe, insbesondere die der aufgeführten Beispiele, in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit anderen Wirkstoffen, wie Insektiziden, Lockstoffen, Sterilantien, Akariziden, Nematiziden, Fungiziden, wachstumsregulierenden Stoffen oder Herbiziden vorliegen. Zu den Insektiziden zählen beispielsweise Phosphorsäureester, Carbamate, Carbonsäureester, Formamidine, Zinnverbindungen, durch Mikroorganismen hergestellte Stoffe u. a.. Bevorzugte Mischungspartner sind:

1. aus der Gruppe der Phosphorsäureester
Azinphos-ethyl,Azinphosmethyl, 1-(4-Chlorphenyl)-4-(O-ethyl, S-propyl)phosphoryloxypyrazol (TIA-230), Chlorpyrifos, Coumaphos, Demeton, Demeton-S-methyl, Diazinon, Dichlorvos, Dimethoat, Ethoprophos, Etrimfos, Fenitrothion, Fenthion, Heptenophos, Parathion, Parathionmethyl, Phosalon, Pirimiphos-ethyl, Pirimiphos-methyl, Profenofos, Prothiofos, Sulprofos, Triazophos, Trichlorphon.

2. aus der Gruppe der Carbamate
Aldicarb, Bendiocarb, BPMC (2-(1-Methylpropyl)phenylmethylcarbamat), Butocarboxim, Butoxicarboxim, Carbaryl, Carbofuran, Carbosulfan, Cloethocarb, Isoprocarb, Methomyl, Oxamyl, Pirimicarb, Promecarb, Propoxur, Thiodicarb.

3. aus der Gruppe der Carbonsäureester
Allethrin. Alphamethrin, Bioallethrin, Bioresmethrin, Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cypermethrin, Deltamethrin, 2,2-Dimethyl-3-
2-chlor-2-trifluormethylvinyl)-cyclopropancarbonsäure-(alpha-
cyano-3-phenyl-2-methyl-benzyl)ester (FMC 54800), Fenpropathrin, Fenfluthrin, Fenvalerat. Flucythrinate, Flumethrin, Fluvalinate, Permethrin, Resmethrin, Tralomethrin.

4. aus der Gruppe der Formamidine
Amitraz, Chlordimeform.

5. aus der Gruppe der Zinnverbindungen
Azocyclotin, Cyhexatin, Fenbutatinoxid

6. Sonstige

Abamektin, Bacillus thuringiensis, Bensultap, Binapacyl, Bromopropylate, Buprofecin Camphechlor, Cartap, Chlorobenzilate, Chlorfluazuron, 2-(4-Chlorphenyl)-4,5-diphenylthiophen (UBI-T 930), Chlofentezine, Cyclopropancarbonsäure(2-naphthylmethyl)-ester (Ro 12-0470), Cyromacin, DDT, Dicofol. N-(3,5-Dichlor-4-(1,1,2, 2-tetrafluoroethoxy)phenylamino)carbonyl)-2,6-difluor-benzamide (XRD 473), Diflubenzuron, N-(2,3-Dihydro-3-methyl-1,2-thiazol-2-ylidene)2,4-xylidene, Dinobuton, Dinocap, Endosulfan, Fenoxycarb, Fenthiocarb, Flubenzimine, Flufenoxuron, Gamma-HCH, Hexythiazox, Hydramethylnon (AC 217 300), Ivermectin, 2-Nitro-methyl-4,5-dihydro-6H-thiazin (SD 52618), 2-Nitromethyl-3,4-dihydrothiazol (SD 35651), 2-Nitromethylene-1,3-thiazinon-3yl-carbamaldehyde (WL 108 477), Propargite, Teflubenzuron, Tetradifon, Tetrasul, Thicyclam, Triflumaron, Kernpolyeder- und Granuloseviren.

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereich variieren, die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0001 bis zu 100 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise von 0,001 bis 1 Gew.-%, liegen. Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepaßten üblichen Weisen.

Nachfolgende Beispiele dienen zur Erläuterung der Erfindung.

A. Formulierungsbeispiele

a) Ein Stäubemittel wird erhalten, indem man 10 Gew.-Teile Wirkstoff und 90 Gew.-Teile Talkum als Inertstoff mischt und in einer Schlagmühle zerkleinert.

b) Ein in Wasser leicht dispergierbares, benetzbares Pulver wird erhalten, indem man 25 Gew.-Teile Wirkstoff, 65 Gew.-Teile kaolinhaltigen Quarz als Inertstoff, 10 Gew.-Teile ligninsulfonsaures Kalium und 1 Gew.-Teil oleoylmethyltaurinsaures Natrium als Netz- und Dispergiermittel mischt und in einer Stiftmühle mahlt.

c) Ein in Wasser leicht dispergierbares Dispersionskonzentrat stellt man her, indem man 40 Gew.-Teile Wirkstoff mit 7 Gew.-Teilen eines Sulfobernsteinsäurehalbesters, 2 Gew.-Teilen eines Ligninsulfonsäure-Natriumsalzes und 51 Gew.-Teilen Wasser mischt und in einer Reibkugelmühle auf eine Feinheit von unter 5 Mikron vermahlt.

d) Ein emulgierbares Konzentrat läßt sich herstellen aus 15 Gew.-Teilen Wirkstoff, 75 Gew.-Teilen Cyclohexanon als Lösungsmittel und 10 Gew.-Teilen oxethyliertem Nonylphenol (10 AeO) als Emulgator.

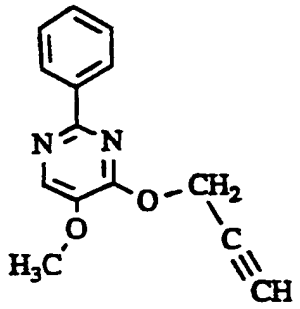
e) Ein Granulat läßt sich herstellen aus 2 bis 15 Gew.-Teilen Wirkstoff und einem inerten Granulatträgermaterial wie Attapulgit, Bimsgranulat und/oder Quarzsand. Zweckmäßigerweise verwendet man eine Suspension des Spritzpulvers aus Beispiel b) mit einem Feststoffanteil von 30 % und spritzt diese auf die Oberfläche eines Attapulgitgranulats, trocknet und vermischt innig. Dabei beträgt der Gewichtsanteil des Spritzpulvers ca. 5 % und der des inerten Trägermaterials ca. 95 % des fertigen Granulats.

B. Chemische Beispiele

Beispiel 1:

5-Methoxy-2-phenyl-4-(3-propinyloxy)-pyrimidin

Verbindung Nr. 1.1



Zu 33 g NaH (80% in Mineralöl) in 500 ml abs. THF tropfte man 15 % einer Mischung aus 118 g Ameisensäureethylester und 104 g Methoxyessigsäuremethylester und erwärmte das Reaktionsgemisch gelinde bis eine Wasserstoffentwicklung festzustellen war. Den restlichen Anteil der obigen Mischung tropfte man anschließend so zu, daß die Reaktionstemperatur bei 35 - 40 °C lag und ein mittlere Wasserstoffentwicklung beobachtet wurde. Hierbei bildete sich ein schwer rührbares Reaktionsgemisch. Das Gemisch wurde 16 Stunden stehengelassen. Anschließend gab man 500 ml Isopropanol, 51,3 g Natriummethanolat und 195,7 g Benzamidinhydrochlorid (80 - 85 %, techn. Qualität, ca. 15 % Wasser enthaltend) hinzu und erhitzte dieses Reaktionsgemisch 120 Minuten unter Rückfluß, wobei das THF teilweise abdestilliert wurde. Anschließend destillierte man die Lösungsmittel ab und nahm den Rückstand in Wasser auf, säuerte mit Essigsäure an und erhielt nach dem Abfiltrieren 145 g (72%) 5-Methoxy-2-phenyl-4-(1H)-pyrimidinon, Smp.: 203-205 °C.

In 600 ml $POCl_3$ und 10 ml N,N-Dimethylanilin erhitzte man 151 g 5-Methoxy-2-phenyl-4-(1H)-pyrimidinon unter Rückfluß. Nach vollständiger Lösung des Pyrimidinons (ca. 60 Minuten) destillierte man bei ca. 200 mm Hg das $POCl_3$ ab, nahm in Methylenchlorid auf und hydrolysierte, wusch die organische Phase neutral, trocknete diese, destillierte das Lösungsmittel ab und erhielt 155 g (95 %) 4-Chlor-5-methoxy-2-phenylpyrimidin, Smp.: 163-167 °C.

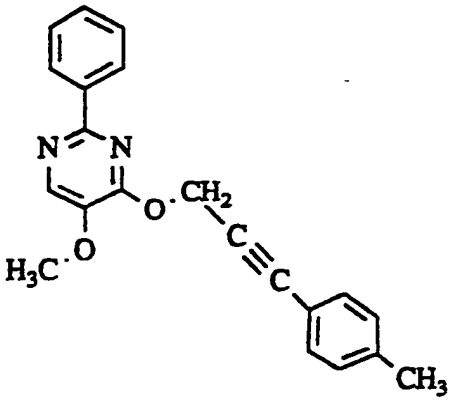
Zu 3,9 g NaH (80% in Mineralöl) in 200 ml abs. THF tropfte man 7,3 g Propinylalkohol, rührte eine Stunde und gab dann 22,1 g 4-Chlor-5-methoxy-2-phenylpyrimidin hinzu. Nach

16 Stunden hydrolysierte man, extrahierte mit Essigester oder Methylenchlorid, wusch die organische Phase, trocknete diese, destillierte das Lösungsmittel ab und erhielt 23 g (96 %) 5-Methoxy-2-phenyl-4-propinyloxypyrimidin, Smp.: 113 °C, Sdp.: 145 °C/ 0,05 mbar.

Beispiel 2:

5-Methoxy-2-phenyl-4-(1-(4-tolyl)-3-propinyloxy)-pyrimidin

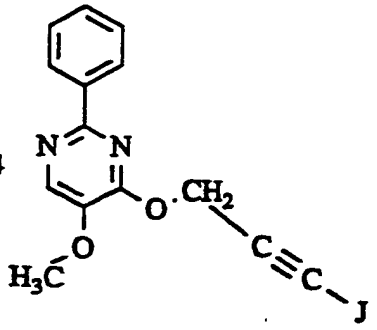
Verbindung Nr. 1.43



In 30 ml Triethylamin wurden 2,4 g 5-Methoxy-2-phenyl-4-propinyloxypyrimidin, 0,07 g Bis-(triphenylphosphin)-palladiumdichlorid und 0,01 g Kupfer-(I)-jodid vorgelegt und 2,8 g 4-Jodtoluol zugetropft. Nach 16 Stunden wurde die Hauptmenge Triethylamin abdestilliert, der Rückstand in Methylenchlorid aufgenommen und mit Wasser gewaschen, getrocknet und eingeengt. Nach Reinigung mittels Säulenchromatographie, mit Essigester und Heptan (1:1) als Laufmittel, erhielt man 1,9 g (58 %)
5-Methoxy-2-phenyl-4-(1-(4-tolyl)-3-propinyloxy)-pyrimidin,
Smp.: 103 - 105 °C.

Beispiel 3:

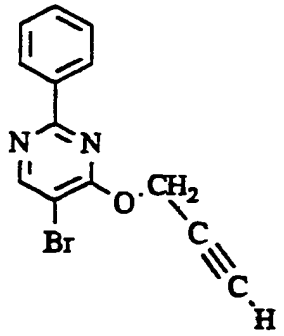
5-Methoxy-2-phenyl-4-(1-jodo-3-propinyloxy)-pyrimidin

Verbindung Nr. 1.34 

Unter N_2-Atmosphäre legte man 4,8 g 5-Methoxy-2-phenyl-4-propinyloxypyrimidin in 100 ml THF vor, kühlte auf -78 °C ab, gab 14 ml 1,6 m n-Butyllithiumlösung in Hexan hinzu. Nach ca. 1 Stunde gab man 5,6 g Jod dazu, ließ das Gemisch auf Raumtemperatur erwärmen und hydrolysierte nach ca. 30 Minuten. Man nahm in Methylenchlorid auf, wusch mit Wasser, destillierte das Lösungsmittel ab, und erhielt nach säulenchromatographischer Reinigung, mit Essigester und Heptan (3:7) als Laufmittel, 6,0 g 5-Methoxy-2-phenyl-4-(1-jodo-3-propinyloxy)-pyrimidin, Smp.: 148 - 150 °C.

Beispiel 4:

5-Brom-2-phenyl-4-(3-propinyloxy)-pyrimidin

Verbindung Nr. 1.96 

In 300 ml Wasser rührte man 3 - 4 Tage 95 g Benzamidinhydrochlorid (80 - 85 %, techn. Qualität, ca. 15 % Wasser enthaltend) und 70 g Natriumformylessigsäureethylester, säuerte mit Essigsäure leicht an und erhielt nach dem Abfiltrieren 33 g (38 %) 2-Phenyl-4-(1H)-pyrimidinon, Smp.: 198 - 203 °C.

Zu 70,8 g 2-Phenyl-4-(1H)-pyrimidinon in 250 ml Essigsäure tropfte man 65,5 g (20,9 ml) Brom, rührte 5 Stunden und ließ das Reaktionsgemisch 18 Stunden stehen, gab auf eine 2 kg Eis/Wassermischung und erhielt nach dem Abfiltrieren 102,8 g (99 %) 5-Brom-2-phenyl-4-(1H)-pyrimidinon, Smp.: 230 - 235 °C.

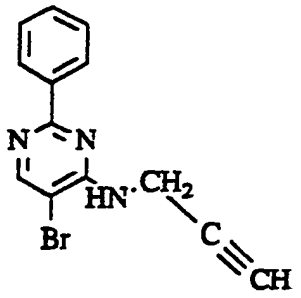
In 300 ml $POCl_3$ und 10 ml N,N-Dimethylanilin erhitzte man 102,8 g 5-Brom-2-phenyl-4-(1H)-pyrimidinon zum Rückfluß. Nach vollständiger Lösung des Pyrimidinons (ca. 60 Minuten) destillierte man bei ca. 200 mm Hg das $POCl_3$ ab, nahm in Methylenchlorid auf und hydrolysierte, wusch die organische Phase neutral, trocknete diese und erhielt nach dem Abdestillieren des Lösungsmittels 89,2 g (83 %) 5-Brom-4-chlor-2-phenylpyrimidin, Smp.: 96 - 101 °C.

Zu 1,1 g NaH (80 % in Mineralöl) in 50 ml abs. THF tropfte man 2,1 g Propinylalkohol, rührte eine Stunde und gab dann 6,7 g 5-Brom-4-chlor-2-phenylpyrimidin hinzu. Nach 16 Stunden hydrolysierte man, extrahierte mit Essigester, wusch die organische Phase, trocknete diese und destillierte das Lösungsmittel ab. Nach säulenchromatographischer Reinigung, mit Essigester und Heptan (3:7) als Laufmittel, erhielt man 4,2 g (58 %) 5-Brom-2-phenyl-4-(3-propinyloxy)-pyrimidin, Smp.: 98 - 99 °C.

Beispiel 5:

5-Brom-2-phenyl-4-(3-propiynylamino)-pyrimidin

Verbindung Nr. 1.142



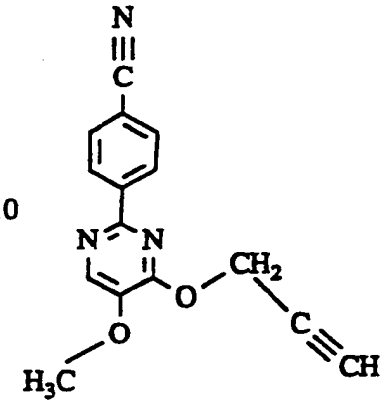
In 100 ml Dimethylformamid wurden 6,7 g 5-Brom-4-chlor-2-phenyl-pyrimidin und 1,7 g

(2,1 ml) Propinylamin vorgelegt und 4,0 g (5,5 ml) Triethylamin zugetropft. Nach 1 Stunde Rühren des Gemisches bei Raumtemperatur erhitzte man 3 Stunden auf 80 - 90°C Innentemperatur (DC-Umsatzkontrolle), hydrolysierte, neutralisierte nach Abkühlung und extrahierte mit Methylenchlorid. Nach dem Waschen und Trocknen der organischen Phase, Abdestillation des Lösungsmittels und Reinigung durch Säulenchromatographie, mit Essigester und Heptan (3:7) als Laufmittel, erhielt man 5,6 g (78 %) 5-Brom-2-phenyl-4-propinylaminopyrimidin, Smp.: 103 - 105 °C.

Beispiel 6:

2-(4-Benzoesäurenitril)-5-methoxy-4-propinyloxy-pyrimidin

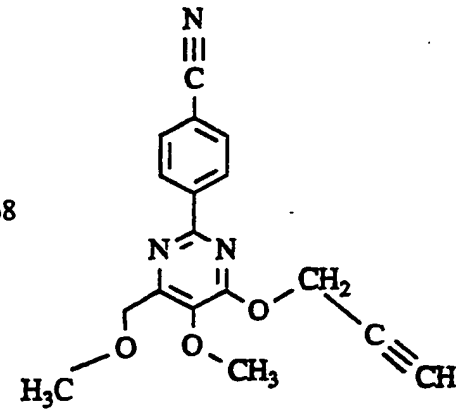
Verbindung Nr. 1.10



und Beispiel 7:

2-(4-Benzoesäurenitril)-5-methoxy-6-methoxymethylen-4-(3 -propinyloxy)-pyrimidin

Verbindung Nr. 1.68



Zu 2,0 g NaH (80% in Mineralöl) in 50 ml abs. Diethylether tropfte man eine Mischung von 7,4 g Ameisensäureethylester und 6,2 g Methoxyessigsäuremethylester und erwärmte das Reaktionsgemisch gelinde bis eine Wasserstoffentwicklung festzustellen ist. Hierbei bildete sich ein schwer rührbares Reaktionsgemisch. Nach Stehenlassen des Gemisches über 16 Stunden gab man 50 ml Methanol, 11,4 ml 30 % Natriummethanolat-Lösung in Methanol und 12 g 4-Aminobenzamidhydrochlorid hinzu und erhitzte dieses Reaktionsgemisch 120 Minuten unter Rückfluß, wobei der Diethylether abdestilliert wurde. Anschließend

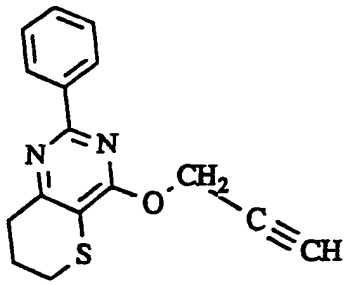
destillierte man die Lösungsmittel ab und nahm den Rückstand in Wasser auf, säuert mit Essigsäure an und erhielt nach Abfiltrieren 11,7 g eines Gemisches aus 2-(4-Benzoesäureamid)-5-methoxy-4-(1H)-pyrimidinon und 2-(4-Benzoesäureamid)-5-methoxy-6-methoxymethylen-4-(1H)-pyrimidinon.

In 100 ml $POCl_3$ und 3 ml N,N-Dimethylanilin erhitzte man 11,7 g des Gemisches aus 2-(4-Benzoesäureamid)-5-methoxy-4-(1H)-pyrimidinon und 2-(4-Benzoesäureamid)-5-methoxy-6-methoxymethylen-4-(1H)- pyrimidinon unter Rückfluß. Nach vollständiger Lösung der Pyrimidinone (ca. 60 Minuten) destillierte man bei ca. 200 mm Hg das $POCl_3$ ab, nahm in Methylenchlorid auf und hydrolysierte, wusch die organische Phase neutral, trocknete diese und nach Abdestillieren des Lösungsmittels erhielt man 9 g eines Gemisches aus 2-(4-Benzoesäurenitril)-4-chlor-5-methoxy-pyrimidin und 2-(4-Benzoesäurenitril)-4-chlor-5-methoxy-6-methoxymethylen-pyrimidin.

Zu 1,1 g NaH (80 % in Mineralöl) in 100 ml abs. THF tropfte man 2,0 g Propinylalkohol, rührte eine Stunde und gab dann 4,9 g des Gemisches aus 2-(4-Benzoesäurenitril)-4-chlor-5-methoxy-pyrimidin und 2-(4-Benzoesäurenitril)-4-chlor-5-methoxy-6-methoxymethylen- pyrimidin hinzu. Nach 16 Stunden hydrolysierte man, extrahierte mit Essigester oder Methylenchlorid, wusch die organische Phase, trocknete diese und erhielt nach säulenchromatographischer Trennung, mit Essigester und Heptan 3:7 als Laufmittel, 0,2 g 2-(4-Benzoesäurenitril)-5-methoxy-6-methoxymethylen-4-(3- propinyloxy)-pyrimidin (4 %), Smp.: 164 °C und 0,4 g 2-(4-Benzoesäurenitril)-5-methoxy-4-(3-propinyloxy)-pyrimidin (8%), Smp.: 183-185 °C.

Beispiel 8:

2-Phenyl-4-propinyloxy-7,8-dihydro-6H-thiopyrano-[2,3-d]- pyrimidin

Verbindung Nr. 3.28 

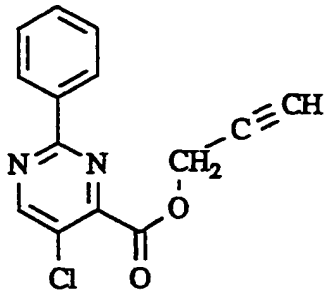
In 200 ml Wasser wurden 37,7 g 2,4,5,6-Tetrahydro-thiopyran-3-on-2-carbonsäureethylester. 40,0 g Benzamidinhydrochlorid (80 - 85 %, techn. Qualität, ca. 15 % Wasser enthaltend) und 21,3 g wasserfreies Natriumcarbonat 4 Tage gerührt. Bei neutralem pH-Wert saugte man ab und erhielt 48,5 g (99%) 2-Phenyl-1,6,7,8-tetrahydro-thiopyrano-[2,3-d]- pyrimidin-4-on, Smp.: > 260 °C.

In 300 ml $POCl_3$ und 5 ml N,N-Dimethylanilin erhitzte man 48,5 g 2-Phenyl-1,6,7,8-tetrahydro-thiopyrano-[2,3-d]-pyrimidin-4-on unter Rückfluß. Nach vollständiger Lösung des Pyrimidinons (ca. 60 Minuten) destillierte man bei ca. 200 mm Hg das $POCl_3$ ab, nahm in Methylenchlorid auf und hydrolysierte, wusch die organische Phase neutral, trocknet diese und destillierte das Lösungsmittel ab. Nach säulenchromatographischer Reinigung, mit Essigester und Heptan (1:1) als Laufmittel, erhielt man 49.6 g (99 %) 4-Chlor-2-phenyl-7,8-dihydro-6H-thiopyrano-[2,3-d]-pyrimidin, Smp.: 135-137 °C.

Zu 1,1 g NaH (80 % in Mineralöl) in 100 ml abs. THF tropfte man 2,0 g Propinylalkohol. rührte eine Stunde und gab dann 6,6 g 4-Chlor-phenyl-7,8-dihydro-6H-thiopyrano-[2,3-d]-pyrimidin hinzu. Nach 16 Stunden hydrolysierte man, extrahierte mit Essigester, wusch die organische Phase, trocknete diese. destillierte das Lösungsmittel ab und erhielt 6,7 g (95 %) 2-Phenyl-4-propinyloxy-7,8-dihydro-6H-thiopyrano-[2,3-d]-pyrimidin, Smp.: 91 - 93 °C.

Beispiel 9:

5-Chlor-2-phenyl-4-pyrimidincarbonsäurepropinylester

Verbindung Nr. 2.1 

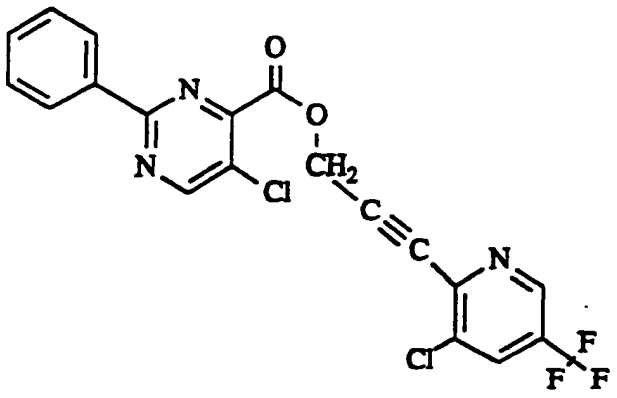
Aus 27,6 g Natrium und 480 ml Ethanol stellte man die entsprechende Ethanolat-Lösung her und löste 67,6 g Mucochlorsäure in 120 ml Ethanol. Zu 156,6 g Benzamidinhydrochlorid (80 - 85 %, techn. Qualität, ca. 15 % Wasser enthaltend) in 80 ml Ethanol tropfte man die halbe Menge der Ethanolat-Lösung, erwärmte auf 55 - 60 °C und tropfte bei dieser Temperatur die erste Hälfte der Muccochlorsäure-Lösung zum Reaktionsgemisch, tropfte die zweite Hälfte des Ethanolats und dann den Rest der Muccochlorsäure-Lösung hinzu. Man rührte noch eine Stunde bei 55 - 60 °C, kühlte und filtrierte ab. Bei der Mutterlauge stellte man mit 2n Salzsäure einen pH-Wert von 2 ein und filtrierte erneut ab.
Ein Teil des Filtrats (40,7 g) wurde in 150 ml Thionylchlorid und 5 ml DMF 2 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Nach dem Abdestillieren des Lösungsmittel erhielt man nach Destillation des Rückstandes über einen Abtreiber 18,8 g
5-Chlor-2-phenyl-4-pyrimidincarbonsäurechlorid.

Zu 2,5 g NaH (80 % in Mineralöl) in 100 ml abs. THF tropfte man 4,7 g Propinylalkohol, rührte eine Stunde und gab dann 18,2 g 5-Chlor-2-phenyl-4-pyrimidincarbonsäurechlorid hinzu. Nach 16 Stunden hydrolysierte man, extrahierte mit Methylenchlorid, wusch die organische Phase, trocknete diese und erhielt nach Abdestillation des Lösungsmittels und Umkristallisieren aus Essigester und Heptan 12,8 g (63%)
5-Chlor-2-phenyl-4-pyrimidincarbonsäurepropinylester, Smp.: 82 - 84 °C.

Beispiel 10:

5-Chlor-2-phenyl-4-pyrimidincarbonsäure-1-(3-chlor-5-trifluor-methyl-2-pyridinyl)-3-propinylester

Verbindung Nr. 2.11

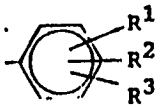
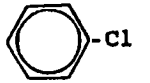
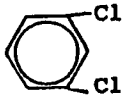
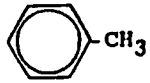
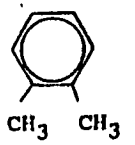
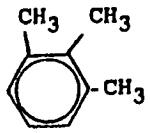


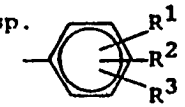
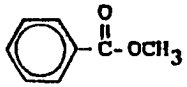
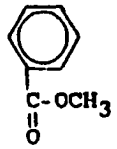
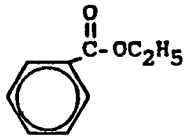
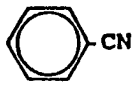
In 100 ml Triethylamin wurden 8,6 g 5-Chlor-2-phenyl-4-pyrimidincarbonsäurepropinylester, 0,14 g Bis-(triphenylphosphin)-palladiumdichlorid und 0,02 g Kupfer-(I)-jodid vorgelegt und 7,8 g 3-Chlor-2-jod-5-trifluormethylpyridin zugetropft. Nach 16 Stunden wurde die Hauptmenge Triethylamin abdestilliert, der Rückstand in Methylenchlorid aufgenommen und mit Wasser gewaschen, getrocknet und eingeengt. Nach Reinigung mittels Säulenchromatographie, mit Essigester und Heptan (3:7) als Laufmittel, erhielt man 5,0 g (40%) 5-Chlor-2-phenyl-4-pyrimidincarbonsäure-1-(3-chlor-5-trifluor-methyl-2-pyridinyl)-3-propinylester, Smp.: 108 - 110°C.

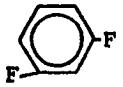
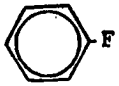
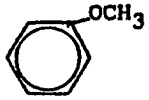
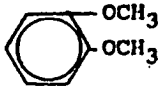
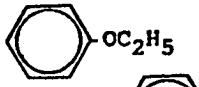
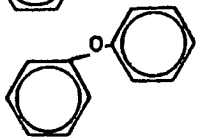
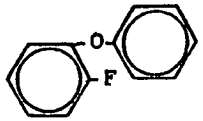
Entsprechend der oben aufgeführten Beispielen können die in Tabelle 1 genannten Verbindungen hergestellt werden.

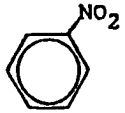
Bei den Beispielen mit dem Suffix A handelt es sich um die Säureadditionssalze der jeweiligen Stammverbindung; in der Spalte "physikalische Konstante" ist dann die Säure angegeben und der zugehörende Schmelz- oder Zersetzungspunkt. Die Salze können im Einzelfall auch noch Kristallwasser enthalten.

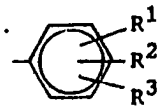
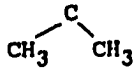
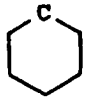
Tabelle 1:

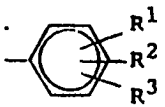
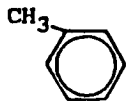
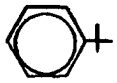
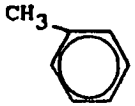
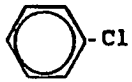
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.1 1.1.A		H	OCH_3	H	O	-	1	113 HCl:175-178(Z)
1.2		H	OCH_3	H	O	-	1	121-123
1.3		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.4		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.5		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.6		H	OCH_3	H	O	-	1	

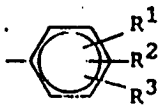
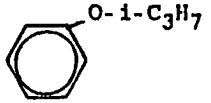
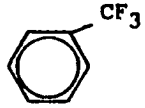
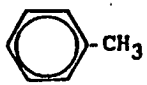
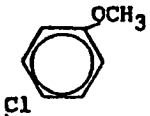
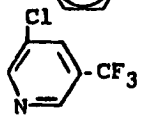
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.7		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.8		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.9		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.10		H	OCH_3	H	O	-	1	183-185
1.11		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.12		H	OCH_3	H	O	-	1	

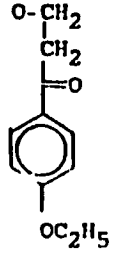
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.13		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.14		H	OCH_3	H	O	-	1	108
1.15		H	OCH_3	H	O	-	1	104
1.16		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.17		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.18		H	OCH_3	H	O	-	1	
1.19		H	OCH_3	H	O	-	1	

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.20		H	OCH_3	H	O	-	1	153-154
1.21		H	OCH_3	H	O	-	2	83-84
1.22	"	CH_3	OCH_3	H	O	-	2	98
1.23	"	CH_3	OCH_3	H	O	-	1	98
1.24	"	H	OCH_3	H	O	$CH(CH_3)$	0	96-98
1.25	"	H	OC_2H_5	H	O	$CH(CH_3)$	0	
1.26	"	H	OCH_3	H	O	$CH(n\text{-}C_3H_7)$	0	73-75

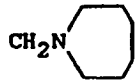
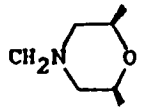
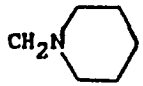
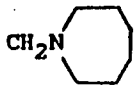
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.27		H	OCH_3	H	O		0	
1.28	"	H	OCH_3	H	O		0	
1.29	"	H	OCH_3	CH_3	O	-	1	
1.30	"	H	OCH_3	C_2H_5	O	-	1	
1.31	"	H	OCH_3	n-C_3H_7	O	-	1	
1.32	"	H	OCH_3	iC_3H_7	O	-	1	
1.33	"	Br	OCH_3	H	O	-	1	118-120

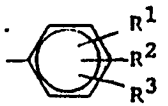
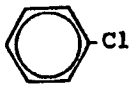
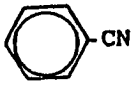
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.34		J	OCH_3	H	O	-	1	148-150
1.35	"	J	OC_2H_5	H	O	-	1	
1.36	"	J	OC_6H_{13}	H	O	-	1	
1.37	"		OCH_3	CH_3	O	-	1	
1.38	"		OCH_3	H	O	-	2	
1.39	"		OCH_3	H	O	-	1	70-71
1.40			OCH_3	H	O	-	1	

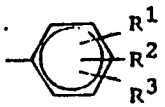
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.41			OCH_3	H	O	-	1	
1.42			OCH_3	H	O	-	1	126-128
1.43	"		OCH_3	H	O	-	1	103-105
1.44	"		OCH_3	H	O	-	1	91
1.45	"		OCH_3	H	O	-	1	
1.46	"		OCH_3	H	O	-	1	101-102

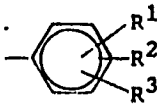
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.47		H	OC_2H_5	H	O	-	1	108
1.48	"	H	O-n-C_3H_7	H	O	-	1	
1.49	"	H	O-i-C_3H_7	H	O	-	1	
1.50	"	H	O-n-C_7H_{15}	H	O	-	1	77 HCl:110
1.51	"	H		H	O	-	1	

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.52		H	OCF_3	H	O	-	1	
1.53	"	H	SCH_3	H	O	-	1	103
1.54	"	H		H	O	-	1	
1.55	"	H		H	O	-	1	
1.56	"	H	OCH_2-	H	O	-	1	98
1.57	"	H	OCH_2-C≡CH	H	O	-	1	
1.58	"	H	OCH_2-C≡CH	H	O	-	1	

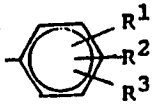
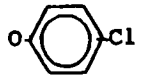
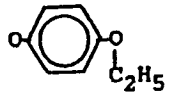
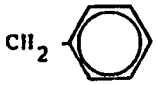
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.59		CH_2OH	OCH_3	H	O	-	1	
1.60	"	CH_2OCH_3	OCH_3	H	O	-	1	
1.61	"	$CH_2N<$	OCH_3	H	O	-	1	
1.62	"		OCH_3	H	O	-	1	79-81
1.63 1.63.A	"		OCH_3	H	O	-	1	82-83 2xHCl:157-160
1.64	"		OCH_3	H	O	-	1	
1.65	"		OCH_3	H	O	-	2	

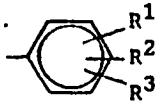
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.66		H	OCH_3	CH_2OCH_3	O	-	1	55-57
1.67		H	OCH_3	CH_2OCH_3	O	-	1	
1.68		H	OCH_3	CH_2OCH_3	O	-	1	164-165
1.69		H	OCH_3	CH_2OCH_3	O	-	2	
1.70	"	J	OCH_3	CH_2OCH_3	O	-	1	
1.71	"	H	OC_2H_5	$CH_2OC_2H_5$	O	-	1	
1.72	"	H	SCH_3	CH_2SCH_3	O	-	1	

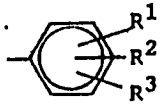
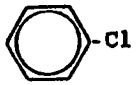
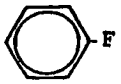
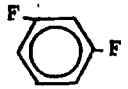
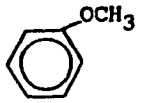
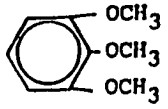
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.73		H	OCH_2CF_3	CH_3	O	-	1	
1.74	"	H	OCH_3	H	O	-	3	60-61
1.75	"	H	OCH_3	H	O	-	4	59
1.76	"	H	OCH_3	H	O	-	5	
1.77	"	H	OCH_3	H	O	-	6	
1.78	"	H	OCH_3	H	O	CH 	0	

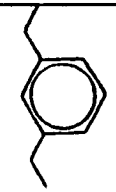
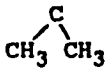
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.79		H	OCH_3	C_2H_5	O	-	2	
1.80	"	H	OCH_3	$n\text{-}C_5H_{11}$	O	-	2	
1.81	"	CH_3	OCH_3	$n\text{-}C_5H_{11}$	O	-	2	
1.82	"	H	OCH_3	CH_3	O	-	2	
1.83	"	H	OCH_3	H	O	$\overset{CH}{\underset{CH_3}{\vert}}$	1	111
1.84	"	H	C_2H_5	CH_3	O	-	1	63-64
1.85 1.85.A	"	H	C_2H_5	CH_3	O	-	2	34-36 HCl:182-184(Z)

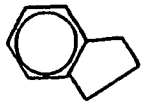
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.86 1.86.A		H	$n\text{-}C_3H_7$	H	O	-	1	64-66 HCl: 145(Z)
1.87 1.87.A	"	H	$n\text{-}C_4H_9$	CH_3	O	-	1	67-69 HCl:169-170(Z)
1.88	"	H	$i\text{-}C_3H_7$	CH_3	O	-	1	62-63
1.89	"	H	$t\text{-}C_4H_9$	H	O	-	1	
1.90	"	H	$n\text{-}C_5H_{10}$	H	O	-	1	
1.91	"	H	CH_3	CH_3	O	-	1	96-98

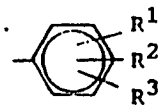
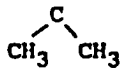
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.92		H		H	O	-	1	
1.93	"	H		H	O	-	1	
1.94 1.94.A	"	H		CH_3	O	-	1	80 HCl:154(Z)
1.95	"	H	"	H	O	-	2	
1.96	"	H	Br	H	O	-	1	98-99
1.97	"	H	Br	H	O	-	2	86-87

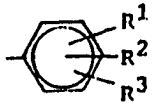
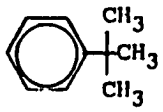
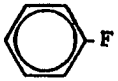
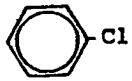
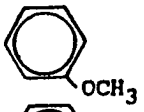
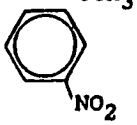
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.98		H	Br	CH_3	O	-	1	
1.99	"	H	Br	n-C_3H_7	O	-	1	
1.100	"	H	Br	CH_3	O	-	2	
1.101	"	J	Br	H	O	-	1	
1.102	"	Br	Br	H	O	-	1	
1.103	"	J	Br	CH_3	O	-	1	
1.104	"	CH_3	Br	H	O	-	2	

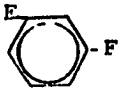
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.105		J	Br	H	O	-	2	
1.106	"	H	Br	CH_3	O	-	2	
1.107		H	Br	CH_3	O	-	2	
1.108		H	Br	H	O	-	1	
1.109		H	Br	H	O	-	1	
1.110		H	Br	H	O	-	1	
1.111		H	Br	H	O	-	1	

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.112		H	Br	H	O	-	1	
1.113		H	Br	H	O		0	118-120
1.114	"	H	Br	H	O		0	
1.115	"	H	Br	H	O		0	
1.116	"	CH_2OH	Br	H	O	-	1	

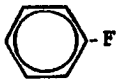
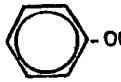
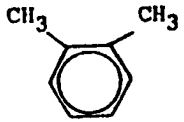
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.117		CH_2OCH_3	Br	H	O	-	1	
1.118		H	Br	H	O	-	1	
1.119		H	Br	H	O	-	1	
1.120		H	Br	H	O	-	1	
1.121			Br	H	O	-	1	

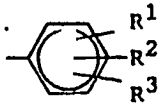
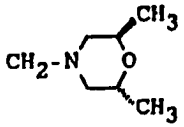
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.122		H	OCH_3	H	NH	-	1	107
1.123	"	H	OC_2H_5	H	NH	-	1	
1.124	"	H	OCH_3	H	NH		0	
1.125	"	H	OCH_3	H	NH		0	
1.126	"	H	OCH_3	H	NCH_3	-	1	
1.127	"		OCH_3	H	NH	-	1	

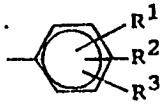
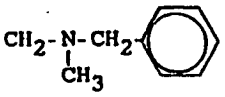
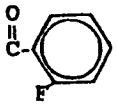
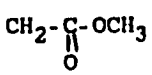
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.128			OCH_3	H	NH	-	1	
1.129	"	H	O-n-C_4H_9	H	NH	-	1	
1.130		H	OCH_3	H	NH	-	1	
1.131		H	OCH_3	H	NH	-	1	
1.132		H	OCH_3	H	NH	-	1	
1.133		H	OCH_3	H	NH	-	1	

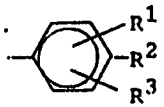
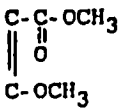
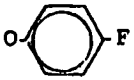
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.134		H	OCH_3	H	NH	-	1	
1.135		H	OCH_3	H	NH	-	1	
1.136		H	$n\text{-}C_4H_9$	H	NH	-	1	
1.137	"	H	$i\text{-}C_3H_7$	H	NH	-	1	

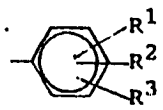
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.138		H	n-C_3H_7	H	NH	-	1	
1.139	"	H	CH_3	CH_3	NH	-	1	
1.140	"	H	CH-C(H)=CH_2	CH_3	NH	-	1	
1.141	"	H	i-C_3H_7	CH_3	NH	-	1	
1.142	"	H	Br	H	NH	-	1	103-105
1.143	"	J	Br	H	NCH_3	-	1	
1.144	"	H	Br	CH_3	NH	-	1	

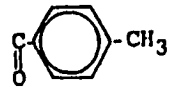
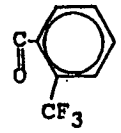
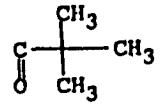
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.145		H	Br	C_2H_5	NH	-	1	
1.146	"	H	Br	C_3H_7	NH	-	1	
1.147	"	H	Br	CH_2-	NH	-	1	
1.148	 -F	H	Br	H	NH	-	1	
1.149	 -OCH_3	H	Br	H	NH	-	1	
1.150		H	Br	H	NH	-	1	

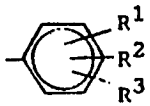
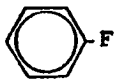
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.151		H	Br	H	NH	-	1	
1.152		H	Cl	H	NH	-	1	
1.153	"	H	Cl	CH_3	NH	-	1	
1.154	"	H	$OCH_2-C\equiv CH$		O	-	1	116-120
1.155	"	H	Br		O	-	1	107
1.156	"		OCH_3	H	O	-	1	81-82

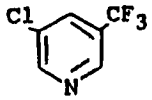
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.157 1.157.A			OCH_3	H	O	-	1	95-96 2xHCl:197-200
1.158	"		OCH_3	H	O	-	1	35-38
1.159	"		OCH_3	H	O	-	1	97-98
1.160	"	H	SCH_3	H	O	-	2	56-57
1.161	"	H	SO_2CH_3	H	O	-	1	182
1.162	"	H		CH_3	O	-	1	

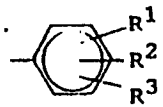
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.163		H		CH_3	O	-	1	
1.164		H	OCH_3	OCH_2-C≡CH	O	-	1	93
1.165	"	H	OCH_3	Cl	O	-	1	98-100
1.166	"	H	OCH_3	OCH_3	O	-	1	65-68
1.167	"	H	OCH_3		O	-	1	81-83
1.168	"	H	OCH_3		O	-	1	

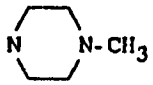
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.169		H	CN	SCH_3	O	-	1	
1.170	"	H	CN	SCH_3	N	-	1	
1.171	"	H	CN	OH	O	-	1	
1.172	"	H	CN	Cl	O	-	1	
1.173	"		OCH_3	H	O	-	1	
1.174	"		OCH_3	H	O	-	1	80-82

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
1.175			OCH_3	H	O	-	1	108-110
1.176	"		OCH_3	H	O	-	1	
1.177	"		OCH_3	H	O	-	1	
1.178	"	C_2H_5	OCH_3	H	O	-	2	67
1.179	"	$n\text{-}C_5H_{11}$	OCH_3	H	O	-	2	Oel

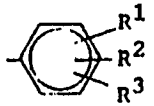
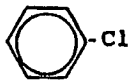
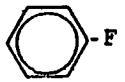
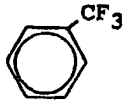
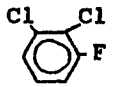
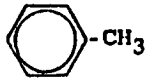
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
2.1		H	Cl	H	O=C	O	1	82-84
2.2	"	H	OCH_3	H	O=C	O	1	
2.3	"	H	Br	H	O=C	O	1	
2.4		H	Cl	H	O=C	O	1	
2.5		H	OCH_3	OCH_3	O=C	O	1	
2.6	"	H	Cl	H	O=C	O	2	
2.7	"	H	Br	H	O=C	O	2	

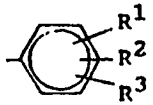
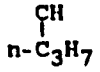
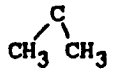
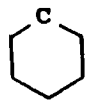
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
2.8		H	Br	OCH_3		O	1	
2.9	"	H	Br	OCH_3		O	1	
2.10	"	H	Br	OCH_3		O	1	
2.11	"		Cl	H		O	1	108-110
2.12	"		Cl	H		O	1	
2.13	"	J	Cl	H		O	1	
2.14	"	J	Br	H		O	1	

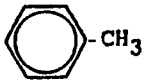
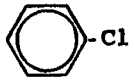
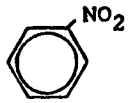
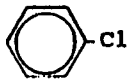
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
2.15		J	Br	OCH_3	O=C	O	1	
2.16	"	CH_3	Br	OCH_3	O=C	O	2	
2.17	"	H	Br	OCH_3	O=C	NH	1	
2.18	"	H	Cl	OCH_3	O=C	NH	1	
2.19	"	H	Br	H	O=C	NH	1	
2.20	"	H	Cl	H	O=C	NH	1	
2.21	"	H	Br	OCH_2-C≡CH	O=C	O	1	

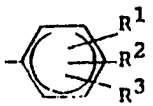
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
2.22		H	Br			O	1	
2.23	"	H	Br			O	1	
2.24	"	H	Br	OCH_2-C≡CH		O	1	
2.25	"	H	OCH_3	OCH_3		O	2	
2.26	"	H	OCH_3	Br	CH_2	O	1	
2.27	"	H	H	Br	CH_2	O	1	
2.28	"	H	OCH_3	OCH_3	CH_2	O	1	

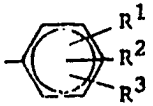
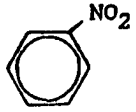
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
2.29		H	H	OCH_3	CH_2	O	1	
2.30	"	H	H	Br	$\underset{\displaystyle OCH_3}{\overset{\displaystyle CH}{|}}$	O	1	
2.31	"	H	H	Br	CH_2	NH	1	

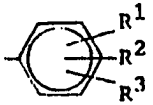
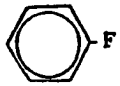
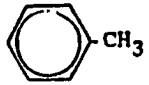
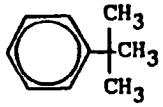
Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
3.1		H	$CH_2CH_2CH_2$		O	-	1	130-131
3.2		H	$CH_2CH_2CH_2$		O	-	1	
3.3		H	$CH_2CH_2CH_2$		O	-	1	
3.4		H	$CH_2CH_2CH_2$		O	-	1	
3.5		H	$CH_2CH_2CH_2$		O	-	1	
3.6		H	$CH_2CH_2CH_2$		O	-	1	
3.7		H	$CH_2CH_2CH_2$		O	-	2	93-94

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
3.8		J		$CH_2CH_2CH_3$	0	-	1	
3.9	"	Br		$CH_2CH_2CH_2$	0	-	1	
3.10	"	CH_3		$CH_2CH_2CH_2$	0	-	1	
3.11	"	H		$CH_2CH_2CH_2$	0		0	
3.12	"	H		$CH_2CH_2CH_2$	0		0	
3.13	"	H		$CH_2CH_2CH_2$	0		0	
3.14	"	H		$CH_2CH_2CH_2$	0		0	

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
3.15			$CH_2CH_2CH_2$	O	-	1	93-96	
3.16	"	H	$CH_2CH_2CH_2$	NH	-	1	147-148	
3.17		H	$CH_2CH_2CH_2$	NH	-	1		
3.18		H	$CH_2CH_2CH_2$	NH	-	1		
3.19		H	CH_2SCH_2	O	-	1	152-154	
3.20		H	OCH_2CH_2	O	-	1		
3.21		H	OCH_2CH_2	O	-	1		

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
3.22		H	CH_2-S-CH_2		NH	-	1	
3.23	"	J	CH_2-S-CH_2		O	-	1	
3.24	"	CH_2-N<	CH_2-S-CH_2		O	-	1	
3.25	"	CH_2-N 	CH_2-S-CH_2		O	-	1	
3.26	"	H	S-CH_2CH_2		O	-	1	
3.27	"	H	S-CH_2CH_2		NH	-	1	
3.28	"	H	$SCH_2CH_2CH_2$		O	-	1	93-95

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
3.29		H		S-$CH_2CH_2CH_2$	O	-	1	
3.30		H		S-$CH_2CH_2CH_2$	NH	-	1	96-98
3.31	"	H		S-$CH_2CH_2CH_2$	O	-	3	
3.32	"	H		$(CH_2)_4$	O	-	1	
3.33	"	H		$(CH_2)_4$	O	-	2	
3.34		H		$(CH_2)_4$	O	-	1	

Beisp. Nr.		R^4	R^5	R^6	x	y	n	Physikal. konst. (Smp. [°C])
3.35		H		$(CH_2)_4$	NH	-	1	
3.36				$(CH_2)_4$	O	-	1	
3.37				$(CH_2)_4$	O	-	1	
3.38	"	H		$(CH_2)_5$	O	-	1	
3.39	"	H		S-CH(CH_3)-CH_2	O	-	1	
3.40	"	H		S-CH_2-CH(CH_3)	O	-	1	
3.41	"	H		N(CH_3)-CH_2-CH_2	O	-	1	

C. Biologische Beispiele

Beispiel 1
Weizenpflanzen der Sorte "Diplomat" wurden ca. 4. Wochen nach Aussaat mit wäßrigen Suspensionen der erfindungsgemäßen Verbindungen tropfnaß behandelt.

Nach dem Antrocknen des Spritzbelages wurden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von Pseudocercosporella herpotrichoides inokuliert. Die Pflanzen wurden danach bei 16 - 18 °C und ca. 90 - 100 % rel. Luftfeuchte gehalten.

Nach einer Inkubationszeit von ca. 4 Wochen konnte die Befallsauswertung der Versuchspflanzen vorgenommen werden. Der Wirkungsgrad wurde aus dem Befallsgrad im Vergleich zu den unbehandelten, infizierten Kontrollpflanzen ermittelt und ist in Tabelle 2 wiedergegeben.

Tabelle 2 :

Verbindungen gem. Beispiel	Wirkungsgrad gegenüber Pseudocercosporella herpotrichoides in % bei ppm Wirkstoff		
	250	125	60
1.001	100	100	100
1.001A	100	100	100
1.014	100	100	100
1.015	100	68	
1.021	100	100	100
1.039	80	65	
1.047	100	100	97
1.053	100	100	100
1.066	100	100	100
1.083	100	90	
1.086	100	100	100
1.086	100	100	100
1.096	100	100	90
1.122	100	100	100
1.142	100	100	100

Tabelle 2 (Fortsetzung)

1.160	100	100	100
2.001	100	100	65
3.007	100	100	95
3.016	100	80	
3.030	100	80	65

unbehandelte,
infizierte Pflanzen 0

Beispiel 2:

Ca. 14 Tage alte Ackerbohnen der Sorte "Harz Freya" oder "Frank's Ackerperle" wurden mit wässrigen Suspensionen der beanspruchten Verbindungen tropfnaß behandelt.

Nach Antrocknen des Spritzbelages wurden die Pflanzen mit einer Sporensuspension (1.5 Mio Sporen/ml) von Botrytis cinerea (BCM-resistenter Stamm) inokuliert. Die Pflanzen wurden in einer Klimakammer bei 20 - 22 °C und ca. 99 % rel. Luftfeuchte weiterkultiviert. Die Infektion der Pflanzen äußert sich in der Bildung schwarzer Flecke auf Blättern und Stengeln. Die Auswertung der Versuche erfolgte ca. 1 Woche nach Inokulation.
Der Wirkungsgrad der Prüfsubstanzen wurde prozentual zur unbehandelten, infizierten Kontrolle bonitiert und ist in Tabelle 3 wiedergegeben.

Tabelle 3 :

Verbindungen gem. Beispiel	Wirkungsgrad gegenüber Botrytis cinerea in % bei ppm Wirkstoff	
	250	125
1. 1	100	100
1. 1A	100	100
1. 14	100	95
1. 24	100	97
1. 39	100	90
1. 47	100	90
1.122	100	90

unbehandelte,
infizierte Pflanzen 0

C. Biologische Beispiele

Beispiel 1

Weizenpflanzen der Sorte "Diplomat" wurden ca. 4. Wochen nach Aussaat mit wäßrigen Suspensionen der erfindungsgemäßen Verbindungen tropfnaß behandelt.

Nach dem Antrocknen des Spritzbelages wurden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von Pseudocercosporella herpotrichoides inokuliert. Die Pflanzen wurden danach bei 16 - 18 °C und ca. 90 - 100 % rel. Luftfeuchte gehalten.

Nach einer Inkubationszeit von ca. 4 Wochen konnte die Befallsauswertung der Versuchspflanzen vorgenommen werden. Der Wirkungsgrad wurde aus dem Befallsgrad im Vergleich zu den unbehandelten, infizierten Kontrollpflanzen ermittelt und ist in Tabelle 2 wiedergegeben.

Tabelle 2:

Verbindungen gem. Beispiel	Wirkungsgrad gegenüber Pseudocercosporella herpotrichoides in % bei ppm Wirkstoff		
	250	125	60
1. 1	100	100	100
1. 14	100	100	100
1. 15	100	68	
1. 23	100	100	100
1. 39	80	65	
1. 47	100	100	97
1. 66	100	100	100
1.122	100	100	100
2. 1	100	100	65
3. 30	100	80	65
unbehandelte, infizierte Pflanzen		0	

Beispiel 2:

Ca. 14 Tage alte Ackerbohnen der Sorte "Harz Freya" oder "Frank's Ackerperle" wurden mit wäßrigen Suspensionen der beanspruchten Verbindungen tropfnaß behandelt.

Nach Antrocknen des Spritzbelages wurden die Pflanzen mit einer Sporensuspension (1,5 Mio Sporen/ml) von Botrytis cinerea (BCM-resistenter Stamm) inokuliert. Die Pflanzen wurden in einer Klimakammer bei 20 - 22 °C und ca. 99 % rel. Luftfeuchte weiterkultiviert. Die Infektion der Pflanzen äußert sich in der Bildung schwarzer Flecke auf Blättern und Stengeln. Die Auswertung der Versuche erfolgte ca. 1 Woche nach Inokulation.

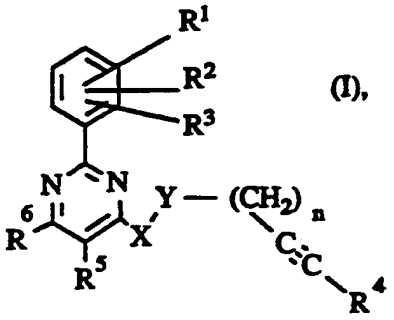
Der Wirkungsgrad der Prüfsubstanzen wurde prozentual zur unbehandelten, infizierten Kontrolle bonitiert und ist in Tabelle 3 wiedergegeben.

Tabelle 3:

Verbindungen gem. Beispiel	Wirkungsgrad gegenüber Botrytis cinerea in % bei ppm Wirkstoff	
	250	125
1. 1	100	100
1. 14	100	95
1. 24	100	97
1. 39	100	95
1. 47	100	90
1.122	100	90
unbehandelte, infizierte Pflanzen		0

Patentansprüche:

1. Verbindungen der Formel I,



(I),

worin

R^1, R^2, R^3 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Thiocyano, (C_1-C_4)Alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_1-C_4)Alkylcarbonylamino, Halo-(C_1-C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl,

Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^1,R^2 und/oder R^3 gegebenenfalls zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N, S, Si oder P mit 4 bis 10 Ringgliedern,

R^4 = Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituierter 5- oder 6-gliedriger Heteroaromat, gegebenenfalls substituiertes Phenylcarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil (Heteroaromat) bis zu dreifach durch Halogen, Ester,

(C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^5 = Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_9)Alkoxy, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino. (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkoxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl , (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^6 = Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl. Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl,

Halo-(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkyloxycarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkyloxycarbonyl, (C_1-C_4)Alkylthiocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylthiocarbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, (C_1-C_4)Haloalkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyloxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylmercapto-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^5 und R^6 gegebenenfalls zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N, S, Si oder P mit 4 bis 10 Ringgliedern,

X = O, S, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl, C=O, C=S oder CR^7R^8,

R^7, R^8 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Hydroxy, (C_1-C_4)Alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxy,

Y = O, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl oder CR^9R^{10}, wenn X = C = O, C = S oder CR^7R^8 bedeutet, oder CR^9R^{10} oder entfällt, wenn X = O, S, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl bedeutet,

R^9, R^{10} = unabhängig voneinander Wasserstoff, (C_1-C_9)Alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylamino-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituert sein kann, und mit Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^9 und R^{10} gegebenenfalls zusammen einen gesättigten oder teilweise ungesättigten Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N, S, Si oder P mit 4 bis 10 Ringgliedern und

n = eine Zahl von 0 bis 8 bedeuten, sowie deren Säureadditionssalze.

2. Verbindungen der Formel I gemäß Anspruch 1, worin

R^1, R^2, R^3 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Thiocyano, (C_1-C_4)Alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, Halo-(C_1-C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl,

(C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, Aminocarbonyl,(C_1-C_4)Alkylaminocarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^1,R^2 und/oder R^3 gegebenenfalls zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N, oder S mit 4 bis 10 Ringgliedern,

R^4 = Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Perhalo-(C_1-C_4)alkylthio, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenylcarbonyl, gegebenenfalls substituierter 5- oder 6-gliedriger Heteroaromat, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil (Heteroaromat) bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^5 = Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_9)Alkoxy, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl,

Dihydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Cyano-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio, Halo-(C_1-C_4)alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl, (C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^6 = Wasserstoff, Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, Hydroxy-(C_1-C_4)alkyl, Perhalo-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, Halo-(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Alkylthio-(C_1-C_4)alkyl, (C_2-C_6)Alkenyl, (C_2-C_6)Alkinyl, (C_1-C_4)Alkylamino, (C_1-C_4)Dialkylamino, (C_3-C_9)Cycloalkylamino, (C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl, (C_3-C_9)Cycloalkyl-(C_1 -C_4)alkyl, (C_3-C_9)Heterocycloalkyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei die cyclischen Reste bis zu dreifach durch (C_1-C_4)Alkyl substituiert sein können, (C_1-C_4)Alkylcarbonyl, (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy, gegebnenfalls substituiertes Phenylketo-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxycarbonyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenyl-(C_1-C_4)alkyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxyphenyl-(C_1-C_4)alkyl, wobei unter gegebenenfalls substituiert zu verstehen ist, daß der Phenylteil bis zu dreifach durch Halogen, Ester, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, (C_1-C_4)Alkylthio, (C_1-C_4)Haloalkyl,

(C_1-C_4)Haloalkoxy oder einfach durch Nitro oder Cyano substituiert sein kann, und Halo in den Substituenten ein- oder mehrfach durch Halogenatome substituiert bedeuten kann,

R^5 und R^6 gegebenenfalls zusammen einen gesättigten, teilweise ungesättigten oder aromatischen Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N oder S mit 4 bis 10 Ringgliedern,

X = O, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl, S, C=O, C=S oder CR^7R^8,

R^7, R^8 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Hydroxy, (C_1-C_4)Alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxy,

Y = O, NH, N-(C_1-C_4)Alkyl oder CR^9R^{10}, wenn X = C=O, C=S oder CR^7R^8 bedeutet oder CR^9R^{10} oder entfällt, wenn X = O, S, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl bedeutet,

R^9, R^{10} = unabhängig voneinander Wasserstoff, (C_1-C_9)Alkyl oder durch Halogen, (C_1-C_4)Alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxy gegebenenfalls substituiertes Phenyl,

R^9 und R^{10} gegebenenfalls zusammen einen gesättigten oder teilweise ungesättigten Carbocyclus oder Heterocyclus mit den Heteroatomen O, N oder S mit 4 bis 10 Ringgliedern,

n = eine Zahl von 0 bis 4 bedeuten, sowie deren Säureadditionssalze.

3. Verbindungen der Formel I gemäß den Ansprüchen 1 oder 2, worin

R^1,R^2,R^3 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Chlor, Brom, Nitro oder (C_1-C_4)Alkoxy,

R^4 = Wasserstoff, Jod, Brom, (C_1-C_4)Alkyl, Dialkylamino-(C_1-C_4)alkyl, Phenyl-(C_1-C_4)alkyl-(C_1-C_4)alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, im Phenylteil (Heteroaromat) durch Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy oder Perhalo-(C_1-C_4)alkyl gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Pyridinyl,

R^5 = Halogen, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy, Phenyl-(C_1-C_4)alkoxy, (C_1-C_4)Alkinyloxy, (C_1-C_4)Alkylmercapto oder (C_1-C_4)Alkylsulfonyl,

R^6 = Wasserstoff, (C_1-C_4)Alkyl, (C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl oder (C_1-C_4)Alkoxycarbonyl,

R^5 und R^6 gegebenenfalls zusammen einen Teil eines gesättigten oder ungesättigten Cyclus mit 5 oder 6 Ringgliedern, bei dem ein Kohlenstoff durch ein S substituiert sein kann,

X = C=O, O oder NH,

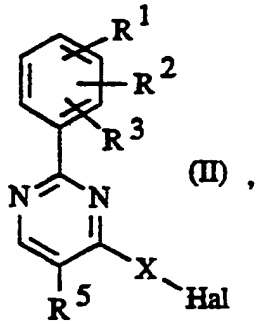
Y = O oder NH, wenn X = C=O ist,

Y = entfällt, wenn X = O oder NH ist und

n = eine Zahl von 0 bis 2 bedeuten.

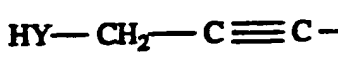
4. Verbindungen der Formel I gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, worin R^1, R^2, R^3 = unabhängig voneinander Wasserstoff, Cl, Br oder OCH_3, R^4 = Wasserstoff, R^5 = Cl, Br, OCH_3 oder OC_2H_5, R^6 = Wasserstoff oder $-OCH_2-CH_2$, X = C=O, O oder NH und Y = O oder NH, wenn X = C=O oder entfällt, wenn X = O oder NH bedeuten.

5. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel I, gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, worin Y = O, NH oder N(C_1-C_4)Alkyl und X = C=O, C=S oder CR^7R^8 bedeuten, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel II



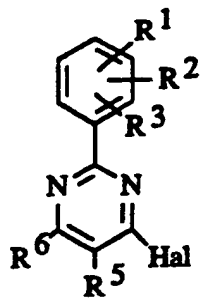
(II),

worin Hal = Chlor oder Brom bedeutet, mit Verbindungen der Formel III



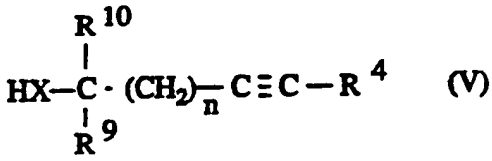
(III)

umsetzt, oder, falls in der Formel I CR^9R^{10} bedeutet oder Y entfällt und X = O, S, NH oder N-(C_1-C_4)Alkyl bedeutet, Verbindungen der Formel IV



(IV),

worin Hal = Chlor oder Brom bedeutet, mit Verbindungen der Formel V



(V)

umsetzt, und wenn R^4 = H bedeutet, den Wasserstoff gegebenenfalls gegen Halogen austauscht.

6. Fungizide Mittel, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine wirksame Menge einer Verbindung der Formel I gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4 enthalten.

7. Verwendung von Verbindungen der Formel I gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4 zur Bekämpfung von Schadpilzen.

8. Verfahren zur Bekämpfung von Schadpilzen, dadurch gekannzeichnet, daß man auf diese oder die von ihnen befallenen Pflanzen, Flächen oder Substrate eine wirksame

Menge einer Verbindung der Formel I gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4 appliziert.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/EP 91/01790

I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER (if several classification symbols apply, indicate all) [6]

According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC

Int.Cl.[5] C 07 D 239/52 C 07 D 239/46 C 07 D 239/34
C 07 D 239/30 C 07 D 239/91 C 07 D 239/94 C 07 D 495/04

II. FIELDS SEARCHED

Minimum Documentation Searched [7]

Classification System	Classification Symbols
Int.Cl.[5]	C 07 D 239/00 C 07 D 495/00

Documentation Searched other than Minimum Documentation to the Extent that such Documents are included in the Fields Searched [8]

III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT [9]

Category [10]	Citation of Document, [11] with indication, where appropriate, of the relevant passages [12]	Relevant to Claim No. [13]
X	Liebigs Annalen Der Chemie, Vol.2, 1987,CVH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, DE; P. Molina et al.: "Preparation of 2,3-dihydrothiazolo[3,2-c]quinazolinium salts from 4(3H)-quinazolinethiones or 4H-1,3-benzothiazine-4-thiones", pages 103-109, see pages 104,107,108 ---	1
X	Chemical Abstracts, Vol.72, 1970, Columbus, Ohio, US; C. Bogentoft et al.: "Medicinal chemistry of oxoquinazolines.IV.N-and O-alkylation of some 2-substituted-3, 4-dihydro-4-oxoquinazolines", see page 258, abstract, 11916r, & Acta Pharm. Suecica 1969,6(4), 489-500 ---	1
A	Patent Abstracts of Japan, Vol.10, No.49 (C-330)[2106], 26 February 1986, & JP, A, 60193971 (MITSUI TOATSU KAGAKU K.K.) 02 October 1985, see abstract -----	1,6-8

* Special categories of cited documents: [10]

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

IV. CERTIFICATION

Date of the Actual Completion of the International Search	Date of Mailing of this International Search Report
15 November 1991 (15.11.91)	23 December 1991 (23.12.91)
International Searching Authority	**Signature of Authorized Officer**
EUROPEAN PATENT OFFICE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 91/01790

I. KLASSIFIKATION DES ANMELDUNGSGEGENSTANDS (bei mehreren Klassifikationssymbolen sind alle anzugeben)[6]

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

Int.Cl.5 C 07 D 239/52 C 07 D 239/46 C 07 D 239/34
C 07 D 239/30 C 07 D 239/91 C 07 D 239/94 C 07 D 495/04

II. RECHERCHIERTE SACHGEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff [7]

Klassifikationssytem	Klassifikationssymbole
Int.Cl.5	C 07 D 239/00 C 07 D 495/00

Recherchierte nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Sachgebiete fallen [8]

III. EINSCHLAGIGE VEROFFENTLICHUNGEN [9]

Art.°	Kennzeichnung der Veröffentlichung [11], soweit erforderlich unter Angabe der maßgeblichen Teile [12]	Betr. Anspruch Nr.[13]
X	Liebigs Annalen Der Chemie, Band 2, 1987, CVH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, DE; P. Molina et al.: "Preparation of 2,3-dihydrothiazolo[3,2-c]quinazolinium salts from 4(3H)-quinazolinethiones or 4H-1,3-benzothiazine-4-thiones", Seiten 103-109, siehe Seiten 104,107,108 ---	1
X	Chemical Abstracts, Band 72, 1970, Columbus, Ohio, US; C. Bogentoft et al.: "Medicinal chemistry of oxoquinazolines.IV. N-and O-alkylation of some 2-substituted-3,4-dihydro-4-oxoquinazolines", siehe Seite 258, Zusammenfassung 11916r, & Acta Pharm. Suecica 1969,6(4), 489-500 --- -/-	1

° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen [10] :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgefuhrt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

IV. BESCHEINIGUNG

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
15-11-1991	23. 12. 91
Internationale Recherchenbehörde	**Unterschrift des bevollmächtigten Bediensteten**
EUROPAISCHES PATENTAMT	Natalie Weinberg

III. EINSCHLAGIGE VEROFFENTLICHUNGEN (Fortsetzung von Blatt 2)

Art °	Kennzeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der maßgeblichen Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	Patent Abstracts of Japan, Band 10, Nr. 49 (C-330)[2106], 26. Februar 1986, & JP, A, 60193971 (MITSUI TOATSU KAGAKU k.K.) 2. Oktober 1985, siehe Zusammenfassung	1,6-8